

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-003990

(43)Date of publication of application : 06.01.1998

(51)Int.Cl.

H05B 33/14

C09K 11/06

(21)Application number : 08-174286

(71)Applicant : IDEMITSU KOSAN CO LTD

(22)Date of filing : 13.06.1996

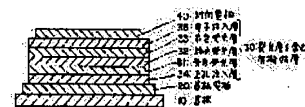
(72)Inventor : NAKAMURA HIROAKI
MATSUURA MASAHIRO

(54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic electroluminescent device in which white light emission at high brightness and high efficiency is possible.

SOLUTION: In this device, plural pixels, each composed of a substrate electrode 20, an organic substance layer 30 having a light emitting layer, and a counter electrode 40 laminated on a substrate 10 in order, are disposed to be separate from each other. In this case, the light emitting layer has a blue light emitting layer 31, a green light emitting layer 32, and a red light emitting layer 33 provided in this order, the blue light emitting layer 31 includes a zone in which blue-color phosphor is included in blue light emitter, the green light emitting layer 32 includes a zone in which green-color phosphor is included in the blue light emitter or green light emitter, and the red light emitting layer 33 includes a zone in which red-color phosphor is included in blue light emitter.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2000 Japan Patent Office

* NOTICES *

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[The technical field to which invention belongs] this invention relates to organic EL photogenesis equipment. It is related with high brightness and organic EL photogenesis equipment in which efficient white photogenesis is possible still in detail.

[0002]

[Description of the Prior Art] For self-photogenesis, an electroluminescence element (EL element) has high visibility, and since it is a perfect solid-state component, it has the characteristic feature of excelling in shock resistance. Therefore, various EL elements using inorganic or the organic compound are proposed, and utilization is tried now. Among these elements, since an organic EL element can reduce applied voltage sharply, the development of various material and elements is furthered. Furthermore, it is effective also in lightweight-izing of display devices, such as a back light, a display, etc. which are used now. About the organic EL element which carries out white photogenesis, the indication of the following techniques is made conventionally. Namely, the thing which specifies the energy level of each class of the (1) organic EL laminated-structure field, and is made to emit light using tunnel injection (the Europe public presentation patent official report of No. 0390551) That the white light emitting device is indicated to be as an example with the element which uses tunnel injection as well as (2) and (1) (JP,3-230584,A)

(3) That the luminous layer of the two-layer structure is indicated to be (JP,2-220390,A and JP,2-216790,A)

(4) What (JP,4-51491,A) consisted of a material from which a luminous layer is divided into a plurality and photogenesis wavelength is different, respectively

(5) The thing of a configuration of having carried out the laminating of a blue emitter (fluorescence peak 380nm-480nm) and the green emitter (480nm - 580nm), and having made the red fluorescent substance contain further (JP,6-207170,A)

(6) The thing of a configuration of having the field where the blue luminous layer contained the blue fluorochrome, and the green luminous layer contained the red fluorochrome, and containing a green fluorescent substance further (JP,7-142169,A)

[0003]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] However, there were the respectively following problems in the above-mentioned technique. That is, in (1) Europe public presentation patent official report of No. 0390551, in order to incorporate a carrier by the tunneling injection by store of a carrier interface, the threshold-limit-value voltage for carrying out white photogenesis exists, and since it is not white, a gradation display is not made to below the threshold limit value.

(2) In JP,3-230584,A, since it is mixed photogenesis of the fluorescence object of a two color, it does not become good white.

(3) although white photogenesis is presented in JP,2-216790,A -- applied-voltage 30V -- the brightness of 110 cds/m2 it is -- luminous efficiency is comparatively [with a high driver voltage] low

(4) In JP,4-51491,A, it is end-face photogenesis structure and is unsuitable for the intended use as the whole field.

(5) In JP,6-207170,A, a luminous layer is a bilayer configuration, and luminous efficiency is the parvus. Still white color purity is bad.

(6) In JP,7-142169,A, a luminous layer is a bilayer, and, also for this, luminous efficiency is the parvus.

[0004] this invention is made in view of an above-mentioned problem, and aims at offering high brightness and organic EL photogenesis equipment in which efficient white photogenesis is possible.

[0005]

[Means for Solving the Problem] In organic EL photogenesis equipment with which two or more photogenesis pixels which according to this invention carry out the laminating of a substrate electrode, the organic substance layer which has a luminous layer, and the counterelectrode one by one, and were formed on the substrate in order to attain the above-mentioned purpose have been arranged by dissociating, respectively A luminous layer is what has a blue luminous layer, a green luminous layer, and a red luminous layer in this order. Moreover, a blue luminous layer has the field which made the blue emitter contain a blue fluorescent substance. Organic EL photogenesis equipment characterized by having the field where a green luminous layer has the field which made the blue emitter or the green emitter contain a green fluorescent substance, and the red luminous layer made the blue emitter contain a red fluorescent substance is offered.

[0006] Moreover, organic EL photogenesis equipment whose inclusion rate over the emitter of a fluorescent substance in the luminous layer of each above is characterized by 0.1-10 mol being % as the desirable mode is offered.

[0007] Moreover, organic EL photogenesis equipment characterized by being the ***** arylene system compound in which the aforementioned blue emitter is shown by the following formula (I) as the desirable mode is offered.

[0008]

[Formula 1]

[0009] R1 - R4 show among [formula the pyridyl machine which is not replaced [the aryloxy group of the carbon numbers 6-18 which are not replaced / the cyclohexyl machine which is not replaced / the aromatic heterocycle formula machine which is not replaced / the aryl group of the carbon numbers 6-18 which are not replaced / a hydrogen atom, the alkyl group of carbon numbers 1-6, the alkoxy group of carbon numbers 1-6, the aralkyl machine of carbon numbers 7-18, a substitute, or /, a substitute, or /, a substitute, or Here, a substituent shows the alkyl group of carbon numbers 1-6, the alkoxy group of carbon numbers 1-6, the aralkyl machine of carbon numbers 7-18, the aryloxy group of carbon numbers 6-18, the acyl group of carbon numbers 1-6, the acyloxy machine of carbon numbers 1-6, a carboxyl group, a styryl machine, the aryl carbonyl group of carbon numbers 6-20, the aryloxy carbonyl group of carbon numbers 6-20, the alkoxy carbonyl group of carbon numbers 1-6, a vinyl group, a ***** carbonyl group, a carbamoyl group, a Plural is sufficient as them even if these substituents are single. Moreover, R1 - R4 Even if it is the same, it may differ mutually, and it is R1. R2 And R3 R4 It may combine with the base replaced mutually and the six membered ring of the saturation which is not replaced [the five membered ring of the saturation which is not replaced / a substitute or / or an unsaturation, a substitute, or] or an unsaturation may be formed. Ar expresses the arylene machine of the carbon numbers 6-20 which are not replaced [a substitute or], and even if the single substitute is carried out, it replaces them -- having -- **** -- moreover, a bonding site -- ***** and Para -- meta--- any are sufficient [two or more] In addition, the substituent is the same as that of the above. Moreover, the substituents of an arylene machine may join together and the six membered ring of the saturation which is not replaced [the five membered ring of the saturation which is not replaced / a substitute or / or an unsaturation, a substitute, or] or an unsaturation may be formed. However, when Ar is a non-replaced phenylene, they are R1 - R4. It is chosen out of the naphthyl group which is not replaced [the alkoxy group of carbon numbers 1-6, the aralkyl machine of carbon numbers 7-18, a substitute, or], a biphenyl machine, a cyclohexyl machine, and an aryloxy group, respectively.]

[0010] Moreover, organic EL photogenesis equipment characterized by coming to arrange a light-filter layer in the near field in which the organic substance layer in which either [at least] the aforementioned substrate electrode or a counterelectrode is light-transmission nature, and it contains the luminous layer of the light-transmission nature electrode as the desirable mode is not formed is offered. Moreover, organic EL photogenesis equipment characterized by including the fraction which contains the common organic compound of two fields which counter as the desirable mode in the interface which two each of three fields containing the aforementioned emitter and a fluorescent substance form, respectively is offered. Moreover, organic EL photogenesis equipment each thickness of whose of three fields containing the aforementioned emitter and a fluorescent substance is characterized by being 0.1nm - 50nm as the desirable mode is offered.

[0011] Organic EL photogenesis equipment whose aforementioned luminous layer is furthermore characterized by carrying out the repeat laminating of the laminating which has a blue luminous layer, a green luminous layer, and a red luminous layer in this order once [or more] more as the desirable mode is offered.

[0012]

[Embodiments of the Invention] Hereafter, the gestalt of implementation of organic EL photogenesis equipment of this invention is explained concretely, referring to a drawing. Drawing 1 is a cross section showing the operation gestalt of 1 of this invention typically. As shown in drawing 1, the organic substance layer 30 which, as for organic EL photogenesis equipment of this invention, contains the substrate electrode 20 and a luminous layer on a substrate 10, and two or more photogenesis pixels in which a counterelectrode 40 carries out a laminating one by one, and was formed dissociate, respectively, and are arranged. Here; in order that a photogenesis pixel may realize a desired color to this including the counterelectrode 40 of the substrate electrodes 20 and 1 of 1, and the organic substance layer 30 containing the luminous layer pinched by these, it is equipped with a light filter if needed, and means the thing of the part which can control a light and an astigmatism LGT independently. The photogenesis pixel shown in drawing 1 can be arranged on an X-Y matrix, and a pattern and a character can be displayed by making a desired pixel ****.

[0013] Moreover, it shall have the field where a luminous layer has the blue luminous layer 31, the green luminous layer 32, and the red luminous layer 33 in this order, have the field where the blue luminous layer 31 made the blue emitter contain a blue fluorescent substance, and have the field where the green luminous layer 32 made the blue emitter or the green emitter contain a green fluorescent substance, and the red luminous layer 33 made the blue emitter contain a red fluorescent substance.

[0014] Here, a blue emitter means the organic compound which has a 380-480nm fluorescence peak by the solid state. Moreover, a green emitter means the organic compound which has a 480-580nm fluorescence peak by the solid state. Moreover, a blue fluorescent substance means the organic compound whose fluorescence peak wavelength in the solution status is 380-480nm. Moreover, a green fluorescent substance means the organic compound whose fluorescence peak wavelength in the solution status is 480-580nm. Moreover, a red fluorescent substance means the organic compound whose fluorescence peak wavelength in the solution status is 580-650nm.

[0015] Moreover, 0.1-10 mol % is desirable still desirable, and the inclusion rate over the emitter of a fluorescent substance is 0.3-5 mol %. If it is less than [0.1 mol %], the photogenesis intensity of a fluorescent substance will not be obtained enough, but if ten mol % is exceeded, the concentration quenching of fluorescence will happen and a fall of a photogenesis intensity and a gap of photogenesis wavelength will happen.

[0016] Moreover, it is desirable that it is 0.1-50nm, and each thickness of three fields containing an emitter and a fluorescent substance is 5-. It is still desirable that it is 40nm. 0. If it is less than 1nm, a thin film will not accomplish a layer, but if 50nm is exceeded, a driver voltage will go up.

[0017] Furthermore, in the interface which two each of three fields containing the aforementioned emitter and a fluorescent substance form, it is desirable that the fraction which contains the common organic compound of two fields which counter, respectively is included. That is, when a green luminous layer is the configuration which contains a green fluorescent substance in a blue emitter, it is still desirable from being able to choose a common material and between element production superior being mitigated as an emitter.

[0018] In this operation gestalt, it considers as the organic substance layer 30 as in a usual organic EL element, and, in addition to luminous layers 31, 32, and 33, the hole-injection layer 34 and the electron-injection layer 35 are arranged. These layers 34 and 35 may be more than bilayers, respectively. Moreover, in this operation gestalt, although luminous layers 31, 32, and 33 are made into the laminating of B/G/R, you may carry out the laminating of 1 times or more of the repeats (for example, B/G/R/B/G/R). As for the order of a laminating of B, G, and R, it is desirable to make it the order of B/G/R from the side which takes out light from the resorption of light being small.

[0019] Hereafter, each component used for organic EL photogenesis equipment of this invention is explained concretely.

[0020] 1. Sufficient upright material not to ask transparency but support multicolor photogenesis equipment as a substrate used by the substrate this invention, is desirable. When carrying out a high definition display especially, if the gap of an organic EL element and a fluorescent substance layer is large, it will be absorbed by the fluorescent substance layer which photogenesis of an organic EL element adjoins, and the desired luminescent color will not be obtained, but an angle of visibility may be made small. Therefore, although it is necessary to make a transparent insulating layer thickness small, when thickness is made small, the mechanical strengths of multicolor photogenesis equipment, such as shock resistance, will be weakened. By arranging a substrate, multicolor photogenesis equipment is reinforced with this invention, and mechanical strengths, such as shock resistance, are raised by it.

[0021] Although a glass plate, a ceramic plate, plastic sheets (a polycarbonate, an acrylic, a vinyl chloride, a polyethylene terephthalate, a polyimide, polyester resin, etc.), a metal plate, the plate that consists of the same material as the insulating layer mentioned later can be mentioned as a concrete material, for example, the metal excellent in mechanical strengths, such as shock resistance, is desirable easily. There is the reinforcement effect that a transparent insulating layer thickness is small and the thickness of the metal of a substrate is considerable also at a parvus case, by using a metal. The material which consists of the metal or alloy more than a kind specifically chosen out of the group which consists of stainless steel, iron, copper, aluminum, magnesium, nickel, zinc, chromium, titanium, *****, silicon, germanium, and a tantalum is desirable. Such a material is excellent in the workability of opening formation with etching processing etc., and since it is an upright material and is moreover a material cheap in cost as a substrate, it is desirable. Moreover, since metallic luster can also be taken out to the side face of an opening like point ** when an opening is formed, the photogenesis from a fluorescent substance layer can be reflected or scattered about, and the multicolor photogenesis equipment which took out light efficiently and was excellent in visibility can be obtained. Although there is especially no limit, since the board thickness of a substrate must make formation of an opening highly minute about the multicolor photogenesis equipment which performs a highly minute display, it has the integrity supporting multicolor photogenesis equipment, and needs the possible thing which it restricts and is made thin. Usually, it is the domain of 5 micrometers - 5mm, and 7 micrometers - 700 micrometers are 10 micrometers - 300 micrometers still preferably.

[0022] 2. What uses the large (4eV or more) metal, the alloy, the electrical conductivity compounds, or such mixture of a work function as the electrode matter as a substrate electrode substrate electrode is used preferably. As an example of such electrode matter, conductive transparent materials, such as metals, such as Au, CuI, ITO and SnO₂, and ZnO, are mentioned. Substrate electrodes are technique, such as a vacuum deposition and the sputtering method, about these electrode matter, and can be produced by making a thin film form. Thus, when taking out the photogenesis from a luminous layer from a substrate, it is desirable that the permeability to photogenesis of a substrate electrode makes it larger than 10%. Moreover, below several 100ohms / ** of sheet resistance of a substrate electrode are desirable. Although the thickness of a substrate electrode is based also on a material, 10nm - 1 micrometer is usually the domain of 10-200nm preferably.

[0023] 3. . for which what uses the parvus (4eV or less) metal, the alloy, the electrical conductivity compounds, and such mixture of a work function as the electrode matter is used as a counterelectrode counterelectrode -- as an example of such electrode matter, a sodium and sodium-potassium alloy, magnesium, a lithium, magnesium and a silver alloy, aluminum/aluminum oxide (aluminum₂ O₃), an aluminum lithium alloy, an indium, the rare earth metal, etc. are mentioned This counterelectrode can produce these electrode matter by making a thin film form by technique, such as vacuum evaporation and sputtering. Moreover, below several 100ohms / ** of the sheet resistance as a counterelectrode are desirable, and the domain of a thickness of 10nm - 1 micrometer and 50-200nm is usually desirable. In addition, in the EL element used for this invention, since it penetrates photogenesis that any of this substrate electrode or a counterelectrode or one side is transparent or translucent and the ejection luminous efficacy of photogenesis is good, it is desirable.

[0024] In this invention, as for either [at least] a substrate electrode or a counterelectrode it is desirable that it is light-transmission nature from taking out photogenesis, and it is desirable to arrange a light filter and a black matrix in the near field in which the organic substance layer containing the luminous layer of the light-transmission nature electrode is not formed from raising color purity etc.

[0025] As a light filter used for this invention, only the following coloring matter can mention the thing of the solid state which melts or distributed coloring matter in the binder resin, for example.

[0026] Red (R) Coloring-matter: Items, such as a perylene system pigment, a lake pigment, an azo system pigment, a Quinacridone system pigment, an anthraquinone system pigment, an anthracene system pigment, an iso indoline system pigment,

and an isoindolinone system pigment, and at least two or more kinds of mixture [0027] Green (G) Coloring-matter: Items, such as a halogen multi-substitute phthalocyanine system pigment, a halogen multi-substitute copper-phthalocyanine system pigment, ***** methane system basic dye, an iso indoline system pigment, and an isoindolinone system pigment, and at least two or more kinds of mixture [0028] Blue (B) Coloring-matter: Items, such as a copper-phthalocyanine system pigment, an indan ***** system pigment, an indophenol system pigment, a cyanine system pigment, and a dioxazine system pigment, and at least two or more kinds of mixture [0029] On the other hand, a binder resin has a transparent (50% or more of lights) desirable material. For example, transparent resins (macromolecule), such as a polymethylmethacrylate, a polyacrylate, a polycarbonate, polyvinyl alcohol, a polyvinyl pyrrolidone, a hydroxyethyl cellulose, and a carboxymethyl cellulose, are mentioned.

[0030] In addition, in order to carry out separation arrangement of the light filter superficially, the photopolymer which can apply the photo-lithography method is also chosen. For example, the optical hardening type resist material which has reactant vinyl groups, such as an acrylic-acid system, a methacrylic-acid system, a poly-cinnamic-acid vinyl system, and a ring rubber system, is mentioned. Moreover, when using the printing method, the printing ink (*****) using the transparent resin is chosen. For example, transparent resins, such as the monomer of a polyvinyl chloride resin, melamine resin, phenol resin, alkyd resin, an epoxy resin, a polyurethane resin, polyester resin, maleic resin, and polyamide resin, oligomer, a polymer and a polymethylmethacrylate, a polyacrylate, a polycarbonate, polyvinyl alcohol, a polyvinyl pyrrolidone, a hydroxyethyl cellulose, and a carboxymethyl cellulose, can be used.

[0031] It is common for membranes to be formed by vacuum deposition or the sputtering method through the mask of a desired light-filter pattern, when a light filter mainly consists of coloring matter, to make a fluorochrome, the above-mentioned resin, and a resist mix, distribute or solubilize, to produce a film by technique, such as a spin coat, a roll coat, and the cast method, on the other hand, when consisting of coloring matter and a binder resin, and to carry out patterning by the pattern of the light filter of a request by technique, such as printing,

[0032] As for the thickness and permeability of each light filter, considering as the following is desirable.

R: 0.5-5.0 micrometers (50% or more of permeability, 610nm) of thickness, 0.5-5.0 micrometers (50% or more of permeability, 545nm) of G:thickness, 0.2-5.0 micrometers (50% or more of permeability, 460nm) of B:thickness

[0033] Moreover, what especially a light filter becomes from coloring matter and a binder resin should just be the domain in which the concentration of coloring matter can carry out patterning of the light filter satisfactory, and can penetrate photogenesis of an organic EL element enough. Although based also on the modality of coloring matter, coloring matter is contained five to 50% of the weight in the light-filter layer including the binder resin to use.

[0034] As a black matrix used for this invention, the following metal, a metallic-oxide thin film, and the pigmentum nigrum can be mentioned, for example. As an example of a metal and a metallic-oxide thin film, the thin film of metals, such as chromium (Cr), nickel (nickel), and copper (Cu), and the oxide of those can be mentioned. As mixture of the above-mentioned metal and a metallic oxide, a with an optical density of 3.0 or more (100-3000Å of thickness) thing is desirable.

[0035] The thing which mixed the coloring matter of carbon black, titanium black, an aniline black, or a light filter, and was nigrities-ized as an example of the pigmentum nigrum, or the thing of the solid state which melts or distributed the above-mentioned coloring matter in the binder resin like the light filter can be mentioned.

[0036] By the photo-lithography method, by the sputtering method, the vacuum deposition, CVD, etc., a metal and a metallic-oxide thin film can perform the membrane formation-on the whole display surface back by the whole insulating substrate surface and the technique of masking, can perform patterning at least, and the pattern of a black matrix can be formed.

[0037] When the pigmentum nigrum is used, patterning can be carried out like the case of a light filter, and a black matrix can be formed.

[0038] 4. What satisfies the fluorescence conditions of the above-mentioned blue emitter in the organic compound which especially the organic compound used for the organic substance layer (1) luminous-layer blue emitter containing a luminous layer is not limited, for example, is indicated by JP,3-231970,A or the international public presentation patent WO official report of No. 92/05131, the Japanese-Patent-Application-No. 5-No. 170354 specification, and the Japanese-Patent-Application-No. 5-No. 129438 specification is mentioned. What satisfies the fluorescence conditions of the above-mentioned blue emitter in the compound used for the combination of what fulfills the fluorescence conditions of the above-mentioned blue emitter indicated by JP,3-231970,A, the international public presentation patent WO official report of No. 92/05131, and the Japanese-Patent-Application-No. 170345 [five to] specification as a desirable thing, and the suitable compound indicated by the Japanese-Patent-Application-No. 129438 [five to] specification, and the hole-injection transportation layer mentioned further later can be mentioned. Next, as a compound which fulfills the fluorescence conditions of the above-mentioned blue emitter indicated by JP,3-231970,A, and the international public presentation patent WO official report of No. 92/05131, it is the aforementioned general formula (I).

[0039]

[Formula 1]

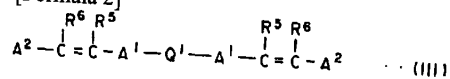
[0040] R1 - R4 show among [formula the pyridyl machine which is not replaced [the aryloxy group of the carbon numbers 6-18 which are not replaced / the cyclohexyl machine which is not replaced / the aromatic heterocycle formula machine which is not replaced / the aryl group of the carbon numbers 6-18 which are not replaced / a hydrogen atom, the alkyl group of carbon numbers 1-6, the alkoxy group of carbon numbers 1-6, the aralkyl machine of carbon numbers 7-18, a substitute, or /, a substitute, or Here, a substituent shows the alkyl group of carbon numbers 1-6, the alkoxy group of carbon numbers 1-6, the aralkyl machine of carbon numbers 7-18, the aryloxy group of carbon numbers 6-18, the acyl group of carbon numbers 1-6, the acyloxy machine of carbon numbers 1-6, a carboxyl group, a styryl machine, the aryl carbonyl group of carbon

numbers 6-20, the aryloxy carbonyl group of carbon numbers 6-20, the alkoxy carbonyl group of carbon numbers 1-6, a vinyl group, a ***** carbonyl group, a carbamoyl group, a Plural is sufficient as them even if these substituents are single. Moreover, R1 - R4 Even if it is the same, it may differ mutually, and it is R1. R2 And R3 R4 It may combine with the base replaced mutually and the six membered ring of the saturation which is not replaced [the five membered ring of the saturation which is not replaced / a substitute or / or an unsaturation, a substitute, or] or an unsaturation may be formed. Ar expresses the arylene machine of the carbon numbers 6-20 which are not replaced [a substitute or], and even if the single substitute is carried out, it replaces them -- having -- **** -- moreover, a bonding site -- ***** and Para -- meta--- any are sufficient [two or more] In addition, the substituent is the same as that of the above. Moreover, the substituents of an arylene machine may join together and the six membered ring of the saturation which is not replaced [the five membered ring of the saturation which is not replaced / a substitute or / or an unsaturation, a substitute, or] or an unsaturation may be formed. However, when Ar is a non-replaced phenylene, they are R1 - R4. It is chosen out of the naphthyl group which is not replaced [the alkoxy group of carbon numbers 1-6, the aralkyl machine of carbon numbers 7-18, a substitute, or], a biphenyl machine, a cyclohexyl machine, and an aryloxy group, respectively.] The ***** ant rain system compound, general formula (II) which are come out of and expressed

A-Q-B ... (II)

Among [formula, A and B show the monad except one hydrogen atom from the compound expressed with the above-mentioned general formula (I), respectively, and even if it is the same, they may differ. Moreover, Q shows the bivalent machine with which conjugated system is cut.] The aromatic methyldiyne compound and general formula (II) which are come out of and expressed

[Formula 2]



[0042] A1 shows among [formula the arylene machine or the bivalent aromatic heterocycle formula machine of carbon numbers 6-20 which is not replaced [a substitute or]. Any of ***** , meta, and Para are sufficient as a joint position. A2 The aryl group or the monovalent aromatic heterocycle formula machine of carbon numbers 6-20 which is not replaced [a substitute or] is shown. R5 And R6 The aryl group of the carbon numbers 6-20 which are not replaced [a hydrogen atom, a substitute, or], a cyclohexyl machine, a monovalent aromatic heterocycle formula machine, the alkyl group of carbon numbers 1-10, the aralkyl machine of carbon numbers 7-20, or the alkoxy group of carbon numbers 1-10 is shown, respectively. In addition, R5 and R6 You may differ, even if it is the same. Here, a substituent may be a phenyl group which it does not have or it has an alkyl group, an aryloxy group, amino groups, or these bases, and even if this substituent is single, plural is sufficient as it. R5 Each substituent is A1. It may join together, the five membered ring or six membered ring of a saturation or an unsaturation may be formed, and it is R6 similarly. Each substituent is A2. It may join together and the five membered ring or six membered ring of a saturation or an unsaturation may be formed. Moreover, Q1 It is the same as that of the above.] It comes out and the aromatic methyldiyne compound expressed is mentioned.

[0043] Here, they are R1 in a general formula (I), - R4. You may differ, even if it is the same like the above-mentioned. respectively A hydrogen atom, the alkyl group of carbon numbers 1-6 (a methyl group, an ethyl group, n-propyl group, an isopropyl machine, n-butyl, an isobutyl machine, sec-butyl, tert-butyl, an isopentyl machine, t-pentyl machine, a neopentyl machine, iso hexyl machine), The alkoxy group of carbon numbers 1-6 (a methoxy machine, the ethoxy base, a propoxy group, butoxy machine, etc.), the aralkyl machine (the aryl groups (a-phenyl group, a biphenyl machine, naphthyl group, etc.) of carbon numbers 6-18, such as a benzyl and a phenethyl machine, --) of carbon numbers 1-8 A cyclohexyl machine, an aromatic heterocycle formula machine (a ***** machine, quinolyl machine), and the aryloxy groups (a phenoxy machine, the biphenyl oxy-base, naphthyloxy machine, etc.) of carbon numbers 6-8 are shown.

[0044] Moreover, R1 - R4 What the substituent combined with these may be used. Namely, R1 - R4 A substituent inclusion phenyl group, a substituent inclusion aralkyl machine, a substituent inclusion cyclohexyl machine, a substituent inclusion biphenyl machine, and a substituent inclusion naphthyl group are shown, respectively. Here A substituent The alkyl group of carbon numbers 1-6, the alkoxy group of carbon numbers 1-6, the aralkyl machine of carbon numbers 7-18, the aryloxy group of carbon numbers 6-18, the acyl group of carbon numbers 1-6, the acyloxy machine of carbon numbers 1-6, a carboxyl group, a styryl machine, They are the aryl carbonyl group of carbon numbers 6-20, the aryloxy carbonyl group of carbon numbers 6-20, the alkoxy carbonyl group of carbon numbers 1-6, a vinyl group, a ***** carbonyl group, a carbamoyl group, a phenyl group, a nitro group, a hydroxyl group, or a halogen atom. More than one may be replaced. Therefore, for example, a substituent inclusion aralkyl machine An alkyl group substitute aralkyl machine (a methyl benzyl, methyl phenethyl machine, etc.), An alkoxy-group substitute aralkyl machine (a methoxybenzyl machine, ethoxy phenethyl machine, etc.), An aryloxy group substitute aralkyl machine (a phenoxy benzyl, naphthyloxy phenethyl machine, etc.), Phenyl-group substitute aralkyl machines (phenyl phenethyl machine etc.) and the above-mentioned substituent inclusion phenyl group An alkyl group substitute phenyl group (a tolyl group, a dimethyl phenyl group, ethyl phenyl group, etc.), They are alkoxy-group substitute phenyl-groups (methoxyphenyl machine, ethoxy phenyl group, etc.) aryloxy group substitute phenyl groups (a phenoxyphenyl machine, naphthyloxy phenyl group, etc.) or a phenyl-group substitute phenyl group (that is, biphenyl machine). Moreover, substituent inclusion cyclohexyl machines are alkyl group substitute cyclohexyl machines (a methyl cyclohexyl machine, a dimethyl cyclohexyl machine, ethyl cyclohexyl machine, etc.), alkoxy-group substitute cyclohexyl machines (a methoxy cyclohexyl machine, ethoxy cyclohexyl machine, etc.) or an aryloxy group substitute cyclohexyl machine (a phenoxy cyclohexyl machine,

naphthyl group (a phenoxy naphthyl group, naphthyl group), and a phenyl-group substitute naphthyl group (phenyl naphthyl group). Substituent inclusion naphthyl groups are alkyl group substitute naphthyl groups (a methyl naphthyl group, dimethyl naphthyl group, etc.), alkoxy-group substitute naphthyl groups (a methoxy naphthyl group, ethoxy naphthyl group, etc.) or an aryloxy group substitute naphthyl group (a phenoxy naphthyl group, naphthyl group), and a phenyl-group substitute naphthyl group (phenyl naphthyl group).

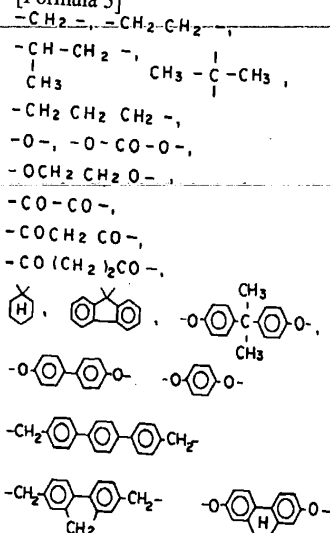
[0045] the above R1 - R4 ***** -- although mentioned above, the alkyl group of carbon numbers 1-6, an aryloxy group, a phenyl group, a naphthyl group, a biphenyl machine, and a cyclohexyl machine are desirable respectively inside Any which are not replaced [a substitute or] are sufficient as these. Moreover, R1 - R4 Even if it is the same, it may differ mutually, and it is replaced [the five membered ring of the saturation which is not replaced / a substitute or / or an unsaturation, a substitute, or] or an unsaturation may be formed.

[0046] On the other hand, Ar in a general formula (I) expresses the arylene machine of the carbon numbers 6-20 which are not replaced [a substitute or], are arylene machines, such as the phenylene group which is not replaced [a substitute or], a biphenylene machine, p-Tell phenylene group, a naphthylene machine, a terphenylene machine, a naphthalene diyl machine, an anthracene diyl machine, a phenanthrene diyl machine, and a ***** diyl machine, and may be replaced also in-less replacing. Moreover, *****, meta, Para of the joint position of methylidyne ($=C=CH-$), etc. are good anywhere. However, when Ar is a non-replaced phenylene, they are R1 - R4. It is chosen out of the naphthyl group which is not replaced [the alkoxy group of carbon numbers 1-6, the aralkyl machine of carbon numbers 7-18, a substitute, or], a biphenyl machine, a cyclohexyl machine, and an aryloxy group. A substituent An alkyl group (a methyl group, an ethyl group, n-propyl group, an isopropyl machine, n-butyl, an isobutyl machine, sec-butyl, t-butyl, an isopentyl machine, t-pentyl machine, a neopentyl machine, iso hexyl machine, etc.), An alkoxy group (a methoxy machine, the ethoxy base, a propoxy group, an isopropoxy group, a butyloxy machine, the isobutyl oxy-base, sec-butyloxy machine, t-butyloxy machine, an isopentyloxy machine, t-pentyloxy machine), An aryloxy group, (a phenoxy machine, a naphthyl group, etc. and acyl groups (a formyl machine, an acetyl group, a propionyl machine, butyryl machine, etc.)), An acyloxy machine, an aralkyl machine (a benzyl, phenethyl machine, etc.), It is a phenyl group, a hydroxyl group, a carboxyl group, a ***** carbonyl group, a carbamoyl group, an aryloxy carbonyl group, a methoxycarbonyl group, an ethoxycarbonyl machine, a butoxy carbonyl group, a nitro group, and a halogen atom, and more than one may be replaced also in the single substitute.

[0047] The methylidyne aromatic compound expressed with the aforementioned general formula (I) has two methylidyne ($=C=CH-$) machines, and the combination of a combination [four kinds of], i.e., *****, transformer-*****, and *****-transformer and a transformer-transformer is in 1 molecule with the geometrical isomerism of this methylidyne machine. The blue emitters in the EL element used for this invention may be which those things, and what the geometrical isomer mixed is sufficient as them. It is the thing of the transformer field altogether especially preferably. Moreover, it may join together between substituents and the above-mentioned substituent may form the five membered ring or six membered ring of the saturation which is not replaced [a substitute and] or an unsaturation.

[0048] A and B in a general formula (II) show the monad except one hydrogen atom from the compound expressed with the above-mentioned general formula (I), respectively, and even if they are the same, they may differ. Here, Q in a general formula (II) shows the bivalent machine with which conjugated system is cut. Here, conjugation contains what is depended on conjugated double bond, an unpaired electron, or a lone-pair electrons according to the non-***** of a pi electron. As an example of Q, it is [0049].

[Formula 3]

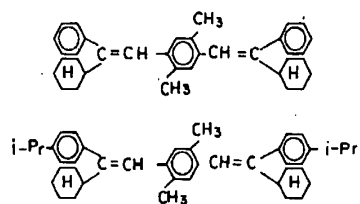


[0050] ***** Thus, the ground using the bivalent base which cuts conjugated system is for EL luminescent color obtained when ** B (namely, compound of a general formula (I)) which is shown above, and which has A is independently used

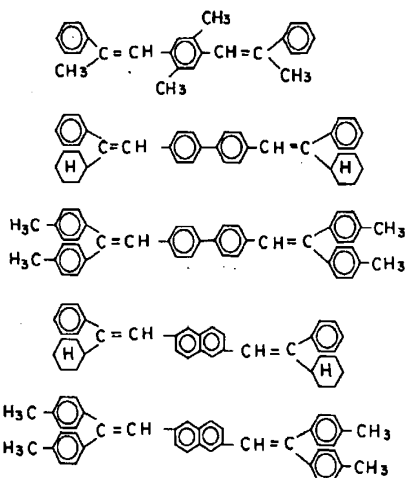
The image displays several chemical structures of stilbenes and related compounds, arranged in a grid-like fashion. The structures are as follows:

- Top row:** A stilbene derivative with a phenyl group on the left and a 4-hydroxyphenyl group on the right. The central double bond is in the trans configuration.
- Second row:** A stilbene derivative with a 4-hydroxyphenyl group on the left and a phenyl group on the right. The central double bond is in the trans configuration.
- Third row:** A stilbene derivative with a 4-methylphenyl group on the left and a 4-methylphenyl group on the right. The central double bond is in the trans configuration.
- Fourth row:** A stilbene derivative with a 4-methylphenyl group on the left and a 4-methylphenyl group on the right. The central double bond is in the trans configuration.
- Fifth row:** A stilbene derivative with a 4-methylphenyl group on the left and a 4-methylphenyl group on the right. The central double bond is in the trans configuration.
- Sixth row:** A stilbene derivative with a 4-methylphenyl group on the left and a 4-methylphenyl group on the right. The central double bond is in the trans configuration.
- Seventh row:** A stilbene derivative with a 4-methylphenyl group on the left and a 4-methylphenyl group on the right. The central double bond is in the trans configuration.
- Eighth row:** A stilbene derivative with a 4-methylphenyl group on the left and a 4-methylphenyl group on the right. The central double bond is in the trans configuration.
- Ninth row:** A stilbene derivative with a 4-methylphenyl group on the left and a 4-methylphenyl group on the right. The central double bond is in the trans configuration.
- Tenth row:** A stilbene derivative with a 4-methylphenyl group on the left and a 4-methylphenyl group on the right. The central double bond is in the trans configuration.

[Formula 5]

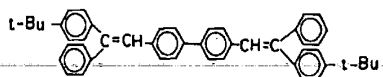
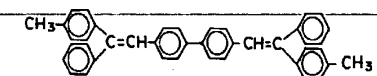
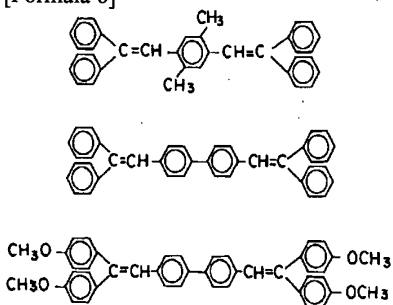


i-pr : イソプロピル基, 以下同様

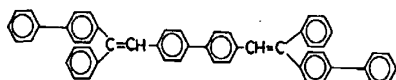


[0054]

[Formula 6]

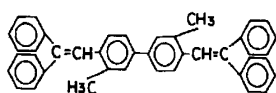
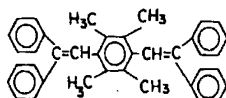
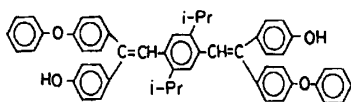
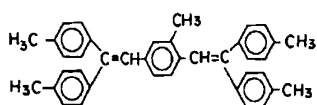
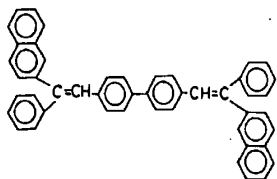


t-Bu : t-ブチル基, 以下同様



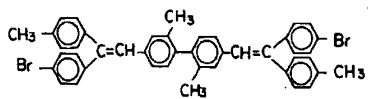
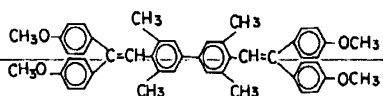
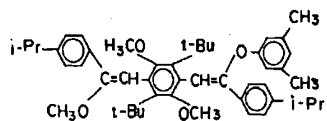
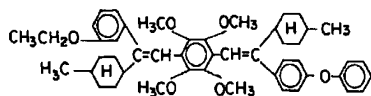
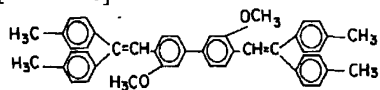
[0055]

[Formula 7]



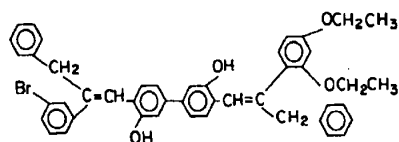
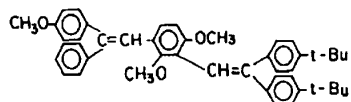
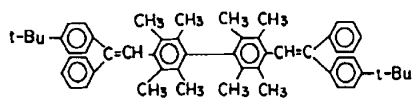
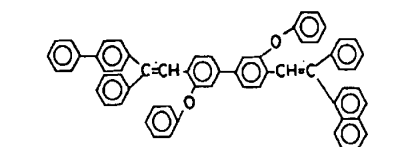
[0056]

[Formula 8]



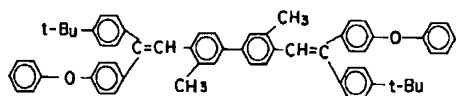
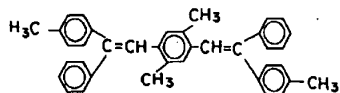
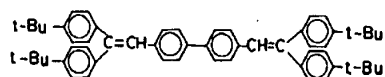
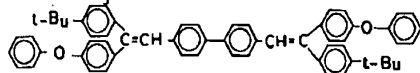
[0057]

[Formula 9]



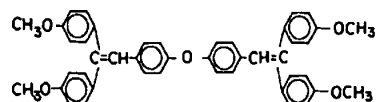
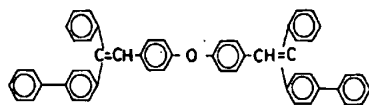
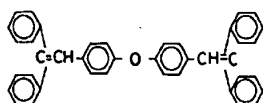
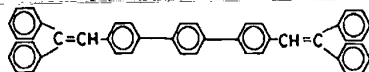
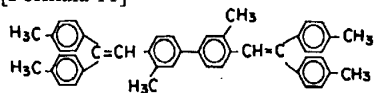
[0058]

[Formula 10]



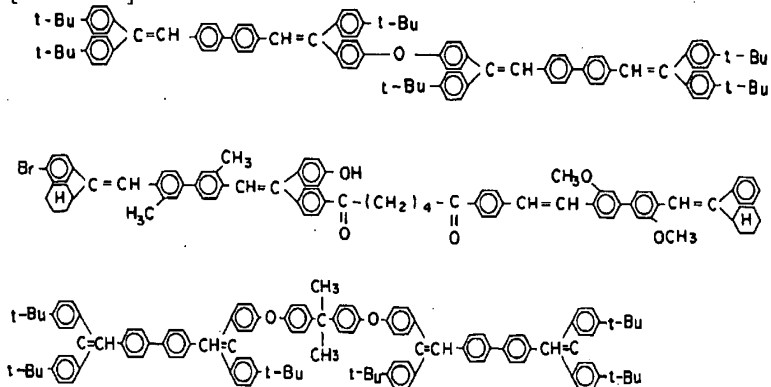
[0059]

[Formula 11]



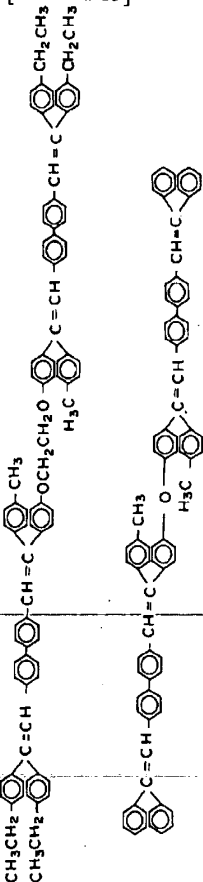
[0060]

[Formula 12]



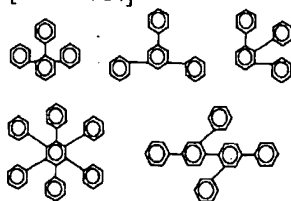
[0061]

[Formula 13]



[0062] It is ****. As other organic compounds, it is [0063].

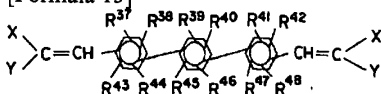
[Formula 14]



[0064] **** is also mentioned. Moreover, as a compound which fulfills the fluorescence conditions of the above-mentioned blue emitter indicated by the Japanese-Patent-Application-No. 170354 [five to] specification, it is a general formula (XI).

[0065]

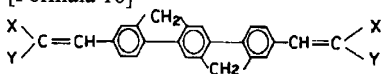
[Formula 15]



[0066] R37-R48 show a hydrogen atom or the alkyl group of carbon numbers 1-6 independently among [formula, respectively]. However, at least one of R37-R48 is the alkyl group of carbon numbers 1-6. Moreover, it may join together mutually and R38, R39 and R40, R41 and R44, and R45, R46 and R47 may form the five membered ring or six membered ring of a saturation or an unsaturation. X and Y show independently the aryl group of the carbon numbers 6-20 which are not replaced [a substitute or], respectively. X and Y may combine with a substituent and may form the five membered ring or six membered ring of the saturation which is not replaced [a substitute or] or an unsaturation. Here, as a substituent, the alkyl group of carbon numbers 1-6, the alkoxy group of carbon numbers 1-6, the aryloxy group of carbon numbers 6-18, a phenyl group, the amino group, a cyano group, a nitro group, a hydroxyl group, or a halogen atom is shown. Two or more these substituents may be replaced even if it is single.] It can come out and the styryl compound of the terphenylene derivative expressed can be mentioned.

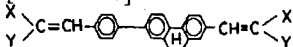
[0067] Here, in a general formula (XI), R37-R48 show the alkyl group of the carbon numbers 1-6, such as a hydrogen atom or a methyl group, an ethyl group, n-propyl group, an isopropyl machine, n-butyl, an isobutyl machine, sec-butyl, t-butyl, an isopentyl machine, t-pentyl machine, a neopentyl machine, n-hexyl machine, and an iso hexyl machine, independently, respectively. However, at least one of R37-R48 is the alkyl group of carbon numbers 1-6, and especially its methyl group or ethyl group is desirable. Moreover, it may join together mutually and R38, R39 and R40, R41 and R44, and R45, R46 and R47 may form the six membered ring of the five membered ring of a saturation or an unsaturation, a saturation, or an unsaturation. As an example of the styryl compound which has the five membered ring or six membered ring of a saturation or an unsaturation, when R38, R39, and R46 and R47 form a saturation five membered ring, it is [0068].

[Formula 16]



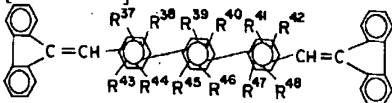
[0069] It is [0070], when **** is mentioned and it forms a saturation six membered ring by R46 and R47.

[Formula 17]



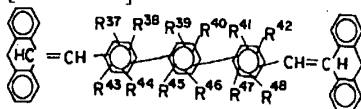
[0071] **** is mentioned. X and Y show independently the aryl groups of carbon numbers 6-20, such as the phenyl group which is not replaced [a substitute or], a naphthyl group, a biphenyl machine, a terphenyl machine, a **** machine, a phenanthrolyl group, a pyrenyl machine, and a peri **** machine, respectively. As a substituent, here, for example A methyl group, an ethyl group, n-propyl group, an isopropyl machine, n-butyl, The alkyl group of the carbon numbers 1-6, such as an isobutyl machine, sec-butyl, t-butyl, an isopentyl machine, t-pentyl machine, a neopentyl machine, n-hexyl machine, and an iso hexyl machine, a methoxy machine, the ethoxy base, n-propoxy group, an isopropoxy group, n-butyloxy machine, The aryloxy groups of carbon numbers 6-18, such as an alkoxy group of the carbon numbers 1-6, such as the isobutyl oxy-base, sec-butyloxy machine; an-isopentyloxy machine, a t-pentyloxy machine, and an n-hexyloxy machine, a phenoxy machine, and a naphthyloxy machine, a phenyl group, the amino group, a cyano group, A nitro group, a hydroxyl group, or a halogen atom is mentioned. Two or more these substituents may be replaced even if it is single. Moreover, X and Y may combine with a substituent and may form the six membered ring of the five membered ring of the saturation which is not replaced [a substitute or] or an unsaturation, a saturation, or an unsaturation. As an example of the styryl compound which has the five membered ring or six membered ring of a saturation or an unsaturation, when X and Y form a saturation five membered ring, it is [0072].

[Formula 18]



[0073] It is [0074], when **** is mentioned and X and Y carry out saturation six-membered-ring formation.

[Formula 19]



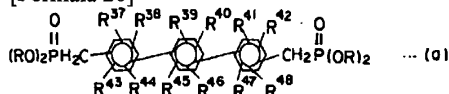
[0075] **** is mentioned.

[0076] The styryl compound expressed with the above-mentioned general formula (XI) can be manufactured by various well-known technique. Specifically, the following two technique is mentioned.

Technique 1 general formula (a)

[0077]

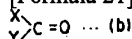
[Formula 20]



[0078] [-- R shows the alkyl group or phenyl group of carbon numbers 1-4 among a formula, and R37-R48 are the same as that of the above] The ***** acid ester come out of and expressed, and a general formula (b)

[0079]

[Formula 21]



[0080] [-- X and Y are the same as that of the above among the formula] It is compoundable by the technique (Witting reaction or Witting-Horner reaction) of coming out and condensing the carbonyl compound expressed under base presence.

Technique 2 general formula (c)

[0081]

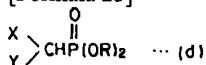
[Formula 22]



[0082] [-- R37-R48 are the same as that of the above among the formula] The dialdehyde compound and general formula (d) which are come out of and expressed

[0083]

[Formula 23]



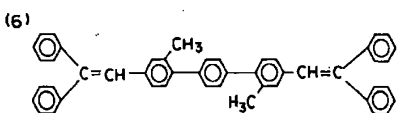
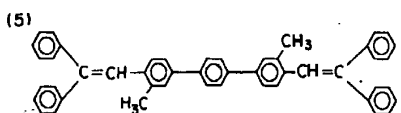
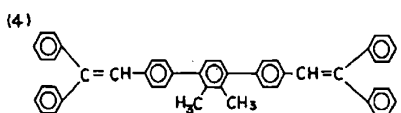
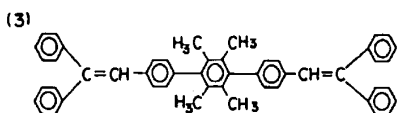
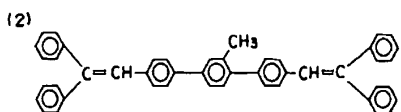
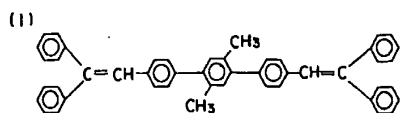
[0084] [-- R, X, and Y are the same as that of the above among the formula] It is compoundable by the technique (Witting reaction or Witting-Horner reaction) of coming out and condensing the ***** acid ester expressed under base presence.

[0085] As a reaction solvent used by this synthesis, a hydrocarbon, alcohols, and ether are desirable. Specifically, methanol; ethanol; isopropanol; butanol; 2-methoxy ethanol; 1, 2-dimethoxyethane; screw (2-methoxy ethyl) ether; dioxane; tetrahydrofuran; toluene; xylene; dimethyl sulfoxide; N.N-dimethylformamide; N-methyl pyrrolidone; 1, and 3-dimethyl-2-imidazolidinone etc. is mentioned. Especially, a tetrahydrofuran and dimethyl sulfoxide are suitable. Moreover, as a condensing agent, a sodium hydroxide, a potassium hydroxide, a sodium amide, a sodium hydride, n-butyl lithium, a sodium methylate, potassium-t-butoxide, etc. are desirable, and n-butyl lithium and potassium-t-butoxide are especially desirable. Although reaction temperature changes with modalities of reaction raw material to use etc. and cannot be defined uniquely, it can usually specify the large area to 0 degree C - about 100 degrees C. It is the domain of 0 degree C - a room temperature especially preferably.

[0086] Although example [of the above-mentioned styryl compound used for below by this invention] (1) - (26) is mentioned, this invention is not limited to them.

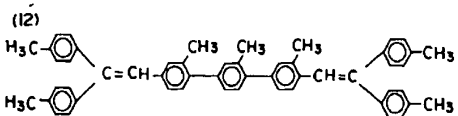
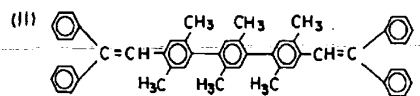
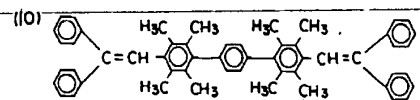
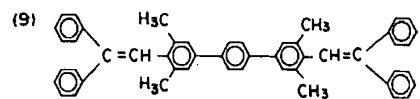
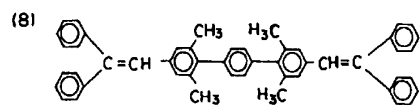
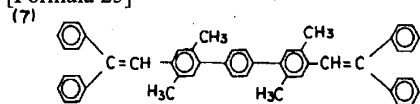
[0087]

[Formula 24]



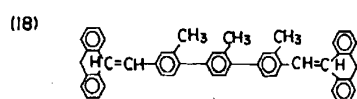
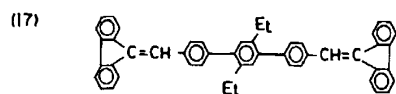
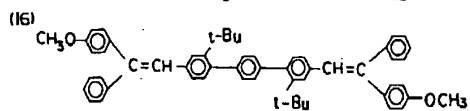
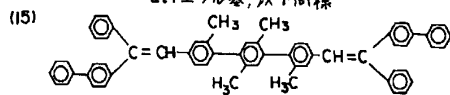
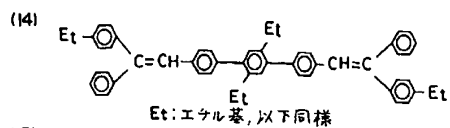
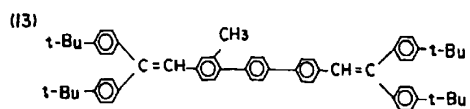
[0088]

[Formula 25]



[0089]

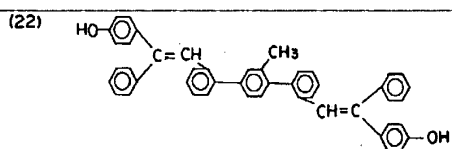
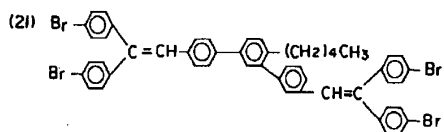
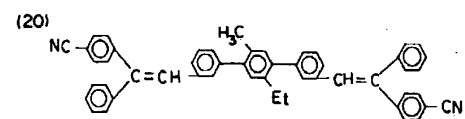
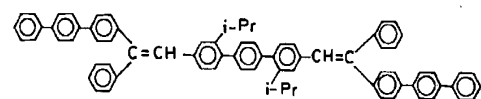
[Formula 26]



[0090]

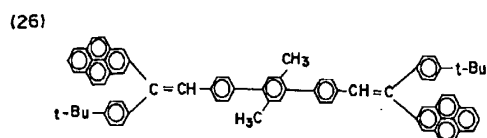
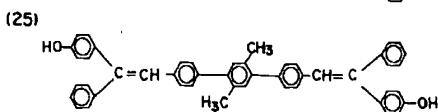
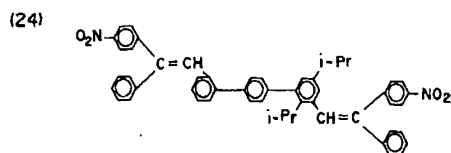
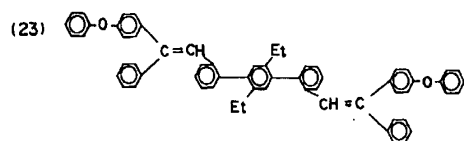
[Formula 27]

(19)



[0091]

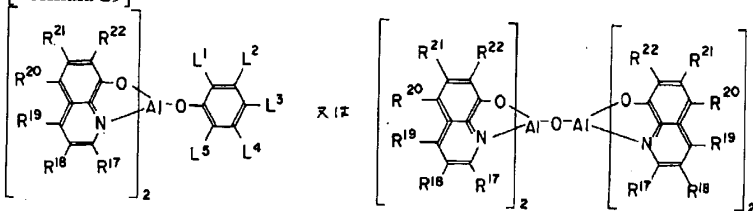
[Formula 28]



[0092] In addition, an aluminum complex which is shown in the following structure expression is also desirable as a blue emitter.

[0093]

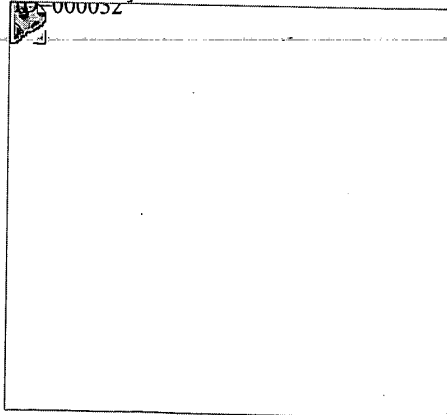
[Formula 29]



[0094] R17-R19 show alkyl groups, such as a hydrogen atom and a methyl group, among [formula, and R20-R22 show a hydrogen atom, a halogen atom, alpha-halo alkyl group, alpha-haloalkoxy machine, an amide group, a carbonyl group, a sulfonyl machine, a carbonyloxy machine, an oxy-carbonyl group, an allyl group, etc. independently respectively. Moreover, L1 - L5 A hydrogen atom and the hydrocarbon group of carbon numbers 1-12 are shown independently respectively, and it is L1. L2 and L2 L3 It may join together mutually and the ring may be formed.] A grade is mentioned. the thickness of the organic luminous layers 31, 32, and 33 -- usually -- 0.1-50nm 0.1-200nm is 1-40nm still preferably preferably

[0095] On the other hand, about the organic compound which is used for a green emitter and whose fluorescence peak wavelength of a solid state is 480nm or more less than 580nm, the coumarin derivative used as laser coloring matter which especially a limit does not have, for example, is indicated by the Europe public presentation patent official report of No. 0281381 is mentioned. Specifically, it is [0096].

[Formula 30]



[0097] It is ****. Furthermore, what satisfies the fluorescence conditions of the above-mentioned green emitter in the organic compound indicated by JP,3-231970,A or the Japanese-Patent-Application-No. 279304 [two to] specification is mentioned. Furthermore, the metal complex of 8-hydroxyquinoline or its derivative can be mentioned as a desirable thing. Specifically, it is

a metal-chelate oxy-***** compound containing the chelate of an oxine (generally an eight quinolinol or 8-hydroxyquinoline). Such a compound shows a high level performance and is easily fabricated by the thin film gestalt. The example of an oxy-***** compound fills the following structure expression.

[0098]

[Formula 31]



[0099] [-- Mt expresses a metal among a formula and an atom required in each, in order for n to be the integer of 1-3, and for the position of Z to be independent and to complete at least two or more fused aromatic rings is shown] Here, the metal expressed with Mt can be used as the monovalence and a bivalent or trivalent metal, and are earth metals, such as alkaline earth metal, such as alkali metal, such as a lithium, sodium, or a potassium, magnesium, or calcium, boron, or aluminum. If it is generally a useful chelate compound, each the monovalence and the bivalent or trivalent metal which are known can be used.

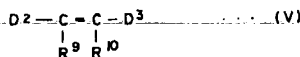
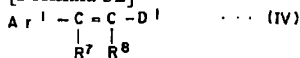
[0100] Moreover, the atom in which Z makes the heterocycle which one side of at least two or more fused aromatic rings becomes from an azole or an azine form is shown. Here, supposing it is required, it is possible to add the ring from which others are different to the above-mentioned fused aromatic ring. Moreover, in order to avoid adding a ***** molecule, with no improvement on a function, as for the number of the atoms shown by Z, maintaining or less to 18 is desirable.

[0101] Furthermore, if a chelation oxy-***** compound is illustrated concretely Tris Aluminum, a screw (Eight quinolinol) Magnesium, a screw (Eight quinolinol) Zinc, a screw (Eight quinolinol) Zinc, a screw (2-methyl-eight quinolinol) Zinc, a screw (Benzo-8-quinolinol) (2-methyl-8-quinolinolato)aluminumoxide, a tris (eight quinolinol) indium, tris (5-methyl-eight quinolinol) aluminum, an eight-quinolinol lithium, a tris (5-*****-eight quinolinol) gallium, tris A gallium, a screw (2-methyl-eight quinolinol) Calcium, 5, 7-dichloro-eight-quinolinol aluminum, tris (5, 7-dibromo-8-hydroxy quinolinol) aluminum, tris (7-propyl-eight quinolinol)-quinolinol aluminum, a screw (5-*****-eight quinolinol) (Eight quinolinol) Beryllium, a screw (there is 2-methyl-8 beryllium etc.)

[0102] A blue fluorescent substance is made to contain in the white organic EL element used for this invention. If a blue fluorescent substance is an organic compound whose fluorescence peak wavelength in the solution status is 380nm or more less than 480nm, there is especially no limit. It is desirable to make [as which it was chosen from the stilbene derivative indicated by the Japanese-Patent-Application-No. 129438 / five to / specification, the ***** arylene derivative, and the tris styryl arylene derivative] a kind contain at least. This stilbene derivative is a compound which has at least two aromatic rings, combines these aromatic rings by the vinyl group or the replaced vinyl group, and is constituted, and has an electron repelling group in either the above-mentioned aromatic ring or a vinyl group. A ***** arylene derivative is a compound which two aromatic rings combine with one arylene machine through a vinyl group or a substitute vinyl group, and has an electron repelling group. A tris styryl arylene derivative is a compound which three aromatic rings combine with one trivalent aromatic ring machine through a vinyl group or a substitute vinyl group, and has an electron repelling group. In the aforementioned derivative which has an electron repelling group in the molecule skeleton, this electron repelling group shows the amino group which has the alkoxy group of carbon numbers 1-10, the aryloxy group of carbon numbers 6-10, and the hydrocarbon group of carbon numbers 1-30 preferably. In the above-mentioned derivative, especially a desirable thing is a compound expressed with following general formula (IV) - (X), (IV) and (V) express a stilbene derivative, (VI), and (VII) a ***** arylene derivative, and - (VIII) (X) expresses a tris styryl arylene derivative.

[0103]

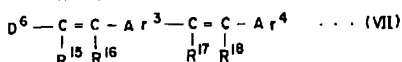
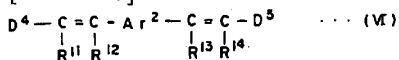
[Formula 32]



[0104] Ar¹ shows the aryl group of carbon numbers 6-20 among [formula. R⁷ - R¹⁰ show a hydrogen atom or the aryl group of carbon numbers 6-20 independently, respectively. D¹ - D³ The aryl group of the carbon numbers 6-20 independently replaced by the electron repelling group, respectively or the condensation polycyclic group machine of carbon numbers 10-30 is shown. Here, Ar¹, R⁷, - R¹⁰ could be replaced independently, respectively, and may be replaced by the amino group which has the alkyl group of carbon numbers 1-10, the alkoxy group of carbon numbers 1-10, the aryloxy group of carbon numbers 6-10, the aralkyl machine of carbon numbers 6-10, or the hydrocarbon group of carbon numbers 1-20. Moreover, this substituent may join together mutually and may form the five membered ring or six membered ring of a saturation or an unsaturation.]

[0105]

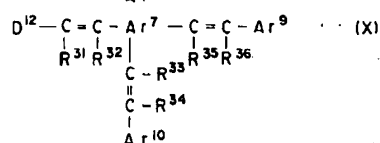
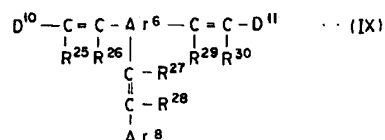
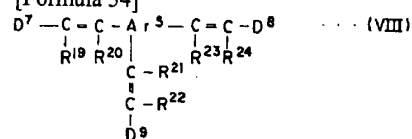
[Formula 33]



[0106] Ar2 and Ar3 show the arylene machine of carbon numbers 6-20 independently among [formula, respectively, and Ar4 shows the aryl group of carbon numbers 6-20. R11-R18 show a hydrogen atom or the aryl group of carbon numbers 6-20 independently, respectively. Here, Ar2 -Ar4, and R11-R18 could be replaced independently, respectively, and they may be replaced by the amino group which has the alkyl group of carbon numbers 1-10, the alkoxy group of carbon numbers 1-10, the aryloxy group of carbon numbers 6-10, the aralkyl machine of carbon numbers 6-10, or the hydrocarbon group of carbon numbers 1-20. Moreover, these substituents may join together mutually and may form the five membered ring or six membered ring of a saturation or an unsaturation. D4 - D6 The aryl group of the carbon numbers 6-20 independently replaced by the electron repelling group, respectively or the condensation polycyclic group machine of carbon numbers 10-30 is shown.]

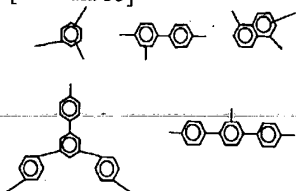
[0107]

[Formula 34]



[0108] Ar5 -Ar7 shows the trivalent aromatic ring machine of carbon numbers 6-24 independently among [formula, respectively, and Ar8 -Ar10 shows the aryl group of carbon numbers 6-20 independently, respectively. R19-R36 show a hydrogen atom or the aryl group of carbon numbers 6-20 independently, respectively. D7 - D12 show the aryl group of the carbon numbers 6-20 independently replaced by the electron repelling group, respectively, or the condensation polycyclic group machine of carbon numbers 10-30. Here, Ar5 -Ar7, and R19-R36 could be replaced independently, respectively, and they may be replaced by the amino group which has the alkyl group of carbon numbers 1-10, the alkoxy group of carbon numbers 1-10, the aralkyl machine of carbon numbers 6-10, the arylated-alkyl machine of carbon numbers 6-10, or the hydrocarbon group of carbon numbers 1-20. Moreover, these substituents may join together mutually and may form the five membered ring or six membered ring of a saturation or an unsaturation.] The above-mentioned general formula (IV) - As an aryl group in (X), a phenyl group, a ***** machine, a naphthyl group, a pyrenyl machine, a ***** machine, an anthranil, a tolyl group, a xylyl group, a still ***** machine, a thienyl group, a ***** machine, a thiophene machine, a ***** Foehn machine, a ***** Foehn machine, etc. are mentioned preferably. As an arylene machine, a phenylene group, a biphenylene machine, a naphthylene machine, an anthra ***** machine, a terphenylene machine, a ***** machine, a still ***** machine, a thienylene machine, a ***** machine, etc. are mentioned preferably. As a trivalent aromatic ring machine, it is [0109] preferably.

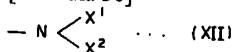
[Formula 35]



[0110] ***** Moreover, as an aryloxy group which is the above-mentioned substituent, the phenyl oxy-base, the biphenyl oxy-base, a naphthyloxy machine, the anthranil oxy-base, the terphenyl oxy-base, the pyrenyl oxy-base, etc. are mentioned, and a methyl group, an ethyl group, an isopropyl machine, a ***** butyl, a pentyl machine, a hexyl machine, etc. are mentioned as an alkyl group. As an alkoxy group, a methoxy machine, the ethoxy base, an isopropoxy group, a ***** butoxy machine, a pentyloxy machine, etc. are mentioned, and a dimethylamino machine, a diethylamino machine, a diphenylamino machine, a phenyl ethylamino machine, a phenyl methylamino machine, a ditolylamino machine, an ethyl phenylamino machine, the phenyl naphthyl amino group, the phenyl biphenyl amino group, etc. are mentioned as an amino group which has a hydrocarbon group. The aforementioned general formula (IV) D1 in - (X) - D12 are the aryl group of the carbon numbers 1-20 replaced by the electron repelling group, or a carbon number. It is the condensation polycyclic group machine of 10-30. Here, with an electron repelling group, the amino group which has the alkoxy group of carbon numbers 1-10, the aryloxy group of carbon numbers 6-20, and the hydrocarbon group of carbon numbers 1-30 preferably is mentioned, and the amino group which has the hydrocarbon group of carbon numbers 1-30 preferably especially is mentioned. As this amino group, it is a general formula. (XII)

[0111]

[Formula 36]



[0112] Among [formula, the aryl group of carbon numbers 6-20, the alkyl group of carbon numbers 1-10, or the aralkyl machine of carbon numbers 6-20 may be shown independently, respectively, it may join together mutually, and X1 and X2 may form the cyclic structure of a saturation or an unsaturation. X1 and X2 **** -- the alkyl group of carbon numbers 1-10, the aralkyl machine of carbon numbers 7-10, the aryloxy group of carbon numbers 6-10, or the alkoxy group of carbon numbers 6-10 may replace [moreover,] Furthermore, general formula (XII) X1 as an aryl group replaced by the amino group expressed X2 You may become the nitrogen-containing aromatic ring machine united [each other].] It comes out and what is expressed is mentioned. As the above-mentioned electron repelling group

Since it became timeout time, translation result display processing is stopped.

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **10003990 A**(43) Date of publication of application: **06 . 01 . 98**

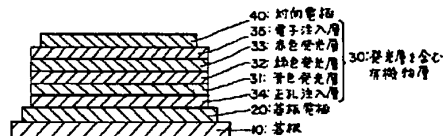
(51) Int. Cl.

H05B 33/14
C09K 11/06
(21) Application number: **08174286**(71) Applicant: **IDEMITSU KOSAN CO LTD**(22) Date of filing: **13 . 06 . 96**
(72) Inventor: **NAKAMURA HIROAKI**
MATSUURA MASAHIDE
(54) **ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE**

(57) Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic electroluminescent device in which white light emission at high brightness and high efficiency is possible.

SOLUTION: In this device, plural pixels, each composed of a substrate electrode 20, an organic substance layer 30 having a light emitting layer, and a counter electrode 40 laminated on a substrate 10 in order, are disposed to be separate from each other. In this case, the light emitting layer has a blue light emitting layer 31, a green light emitting layer 32, and a red light emitting layer 33 provided in this order, the blue light emitting layer 31 includes a zone in which blue-color phosphor is included in blue light emitter, the green light emitting layer 32 includes a zone in which green-color phosphor is included in the blue light emitter or green light emitter, and the red light emitting layer 33 includes a zone in which red-color phosphor is included in blue light emitter.



COPYRIGHT: (C)1998,JPO

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-3990 ✓

(43) 公開日 平成10年(1998) 1月6日

(51) Int.Cl. ⁶	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 5 B 33/14			H 0 5 B 33/14	
C 0 9 K 11/06			C 0 9 K 11/06	Z

審査請求 未請求 請求項の数 7 F D (全 35 頁)

(21) 出願番号 特願平8-174286
(22) 出願日 平成8年(1996) 6月13日

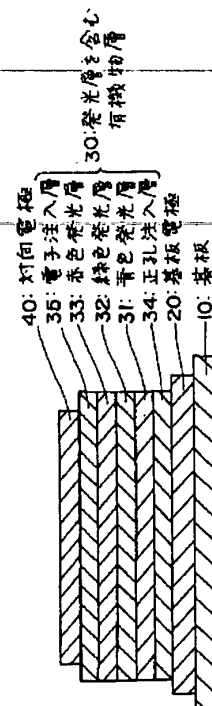
(71) 出願人 000183646
出光興産株式会社
東京都千代田区丸の内3丁目1番1号
(72) 発明者 中村 浩昭
千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株式会社内
(72) 発明者 松浦 正英
千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株式会社内
(74) 代理人 弁理士 渡辺 喜平 (外1名)

(54) 【発明の名称】 有機EL発光装置

(57) 【要約】

【課題】—高輝度、高効率の白色発光が可能な有機E-L発光装置を提供する。

【解決手段】 基板10上に、基板電極20、発光層を有する有機物層30、および対向電極40を順次積層して形成された複数の発光画素が、それぞれ分離して配置された有機EL発光装置において、発光層が、青色発光層31、緑色発光層32、および赤色発光層33をこの順に有するものであり、また青色発光層31が、青色発光体に青色蛍光体を含有させた領域を有し、緑色発光層32が、青色発光体または緑色発光体に緑色蛍光体を含有させた領域を有し、かつ赤色発光層33が、青色発光体に赤色蛍光体を含有させた領域を有することを特徴とする有機EL発光装置。

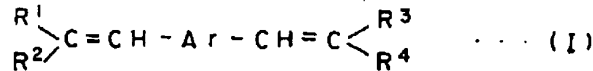


1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 基板上に、基板電極、発光層を有する有機物層、および対向電極を順次積層して形成された複数の発光画素が、それぞれ分離して配置された有機EL発光装置において、

発光層が、青色発光層、緑色発光層、および赤色発光層をこの順に有するものであり、また青色発光層が、青色発光体に青色蛍光体を含有させた領域を有し、緑色発光層が、青色発光体または緑色発光体に緑色蛍光体を含有させた領域を有し、かつ赤色発光層が、青色発光体に赤



【式中、 $R^1 \sim R^4$ は、それぞれ水素原子、炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数7～18のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～18のアリール基、置換もしくは無置換の芳香族複素環式基、置換もしくは無置換のシクロヘキシル基、置換もしくは無置換の炭素数6～18のアリールオキシ基、置換もしくは無置換のピリジル基を示す。ここで、置換基は炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数7～18のアラルキル基、炭素数6～18のアリールオキシ基、炭素数1～6のアシル基、炭素数1～6のアシルオキシ基、カルボキシル基、スチリル基、炭素数6～20のアリールカルボニル基、炭素数6～20のアリールオキシカルボニル基、炭素数1～6のアルコキシカルボニル基、ビニル基、アニリノカルボニル基、カルバモイル基、フェニル基、ニトロ基、水酸基あるいはハロゲン原子を示す。これらの置換基は単一でも複数でもよい。また、 $R^1 \sim R^4$ は同一でも、また互いに異なっているてもよく、 R^1 と R^2 及び R^3 と R^4 は互いに置換している基と結合して、置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の六員環を形成してもよい。 Ar は置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリーレン基を表し、単一置換されていても、複数置換されていてもよく、また結合部位は、オルト、パラ、メタいずれでもよい。なお、置換基は前記と同じである。また、アリーレン基の置換基同士が結合して、置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の六員環を形成してもよい。但し、 Ar が無置換フェニレンの場合、 $R^1 \sim R^4$ は、それぞれ炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数7～18のアラルキル基、置換もしくは無置換のナフチル基、ビフェニル基、シクロヘキシル基、アリールオキシ基より選ばれたものである。】

【請求項4】 前記基板電極または対向電極の少なくとも一方が、光透過性であり、その光透過性電極の、発光層を含む有機物層が形成されていない側の面に、カラーフィルタ層を配設してなることを特徴とする請求項1～

2

色蛍光体を含有させた領域を有することを特徴とする有機EL発光装置。

【請求項2】 前記それぞれの発光層における、蛍光体の発光体に対する含有割合が、0.1～10モル%であることを特徴とする請求項1記載の有機EL発光装置。

【請求項3】 前記青色発光体が、下記式(I)で示されるジスチリルアリーレン系化合物であることを特徴とする請求項1または2記載の有機EL発光装置。

【化1】

3のいずれか1項記載の有機EL発光装置。

【請求項5】 前記発光体と蛍光体とを含有する三つの領域のうちの各二つが形成する界面において、対向する二つの領域のそれぞれが、共通の有機化合物を含有する部分を含むことを特徴とする請求項1～4のいずれか1項記載の有機EL発光装置。

【請求項6】 前記発光体と蛍光体とを含有する三つの領域のそれぞれの厚さが、0.1～50nmであることを特徴とする請求項1～5のいずれか1項記載の有機EL発光装置。

【請求項7】 前記発光層が、青色発光層、緑色発光層および赤色発光層をこの順に有する積層を、さらに一回以上繰り返し積層したものであることを特徴とする請求項1～6のいずれか1項記載の有機EL発光装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は有機EL発光装置に関する。さらに詳しくは、高輝度、高効率の白色発光が可能な有機EL発光装置に関する。

【0002】

【従来の技術】 エレクトロルミネッセンス素子(EL素子)は、自己発光のため視認性が高く、かつ完全固体素子であるため、耐衝撃性に優れるという特徴を有している。そのため、現在、無機または有機化合物を用いた様々なEL素子が提案され、かつ、実用化が試みられている。これらの素子のうち、有機EL素子は印加電圧を大幅に低下させることができるので、各種材料・素子の開発が進められている。さらに、現在用いられているバックライトやディスプレイなどの表示素子の軽量化にも有効である。白色発光する有機EL素子については、従来、次のような技術の開示がなされている。すなわち、

(1) 有機EL積層構造体の各層のエネルギー準位を規定し、トンネル注入を利用して発光させるもの(ヨーロッパ公開特許第0390551号公報)

(2) (1)と同じくトンネル注入を利用する素子で実施例として白色発光素子が記載されているもの(特開平3-230584号公報)

(3) 二層構造の発光層が記載されているもの(特開平2-220390号公報および特開平2-216790号公報)

(4) 発光層を複数に分割してそれぞれ発光波長の異なる材料で構成されたもの(特開平4-51491号公報)

(5) 青色発光体(蛍光ピーク380nm~480nm)と緑色発光体(480nm~580nm)とを積層させ、さらに赤色蛍光体を含有させた構成のもの(特開平6-207170号公報)

(6) 青色発光層が青色蛍光色素を含有し、緑色発光層が赤色蛍光色素を含有した領域を有し、さらに緑色蛍光体を含有する構成のもの(特開平7-142169号公報)

【0003】

【発明が解決しようとする課題】しかし、上記技術にはそれぞれ次のような問題があった。すなわち、

(1) ヨーロッパ公開特許第0390551号公報では、キャリアをキャリア界面の蓄積によるトンネリング注入によって取り込むため白色発光するための域値電圧が存在し、その域値以下においては白色ではないため階調表示ができない。

(2) 特開平3-230584号公報では、二色の蛍光物の混合発光であるため良好な白色にはならない。

(3) 特開平2-216790号公報では、白色発光を呈するが、印加電圧30Vで輝度110cd/m²であり、駆動電圧が高いわりには発光効率が低い。

(4) 特開平4-51491号公報では、端面発光構造であり面全体としての用途には不適である。

(5) 特開平6-207170号公報では、発光層が二層構成であり、発光効率が小さい。さらに白色の色純度が悪い。

(6) 特開平7-142169号公報では、発光層が二層であり、これも発光効率が小さい。

【0004】本発明は、上述の問題に鑑みなされたものであり、高輝度、高効率の白色発光が可能な有機EL発光装置を提供することを目的とする。

【0005】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するため、本発明によれば、基板上に、基板電極、発光層を有する有機物層、および対向電極を順次積層して形成された複数の発光画素が、それぞれ分離して配置された有機EL発光装置において、発光層が、青色発光層、緑色発光層、および赤色発光層をこの順に有するものであり、また青色発光層が、青色発光体に青色蛍光体を含有させた領域を有し、緑色発光層が、青色発光体または緑色発光体に緑色蛍光体を含有させた領域を有し、かつ赤色発光層が、青色発光体に赤色蛍光体を含有させた領域を有することを特徴とする有機EL発光装置が提供される。

【0006】また、その好ましい態様として、前記それ

ぞれの発光層における、蛍光体の発光体に対する含有割合が、0.1~10モル%であることを特徴とする有機EL発光装置が提供される。

【0007】また、その好ましい態様として、前記青色発光体下記式(1)で示されるジスチリルアリーレン系化合物であることを特徴とする有機EL発光装置が提供される。

【0008】

【化1】

10 【0009】[式中、R¹~R⁴は、それぞれ水素原子、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~6のアルコキシ基、炭素数7~18のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6~18のアリール基、置換もしくは無置換の芳香族複素環式基、置換もしくは無置換のシクロヘキシル基、置換もしくは無置換の炭素数6~18のアリールオキシ基、置換もしくは無置換のピリジル基を示す。ここで、置換基は炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~6のアルコキシ基、炭素数7~18のアラルキル基、炭素数6~18のアリールオキシ基、炭素数1~6のアシル基、炭素数1~6のアシルオキシ基、カルボキシル基、スチリル基、炭素数6~20のアリールカルボニル基、炭素数6~20のアリールオキシカルボニル基、炭素数1~6のアルコキシカルボニル基、ビニル基、アニリノカルボニル基、カルバモイル基、フェニル基、ニトロ基、水酸基あるいはハロゲン原子を示す。これらの置換基は単一でも複数でもよい。また、R¹~R⁴は同一でも、また互いに異なっていてもよく、R¹とR²及びR³とR⁴は互いに置換している基と結合して、置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の六員環を形成してもよい。Arは置換もしくは無置換の炭素数6~20のアリーレン基を表し、単一置換されていても、複数置換されていてもよく、また結合部位は、オルト、パラ、メタいずれでもよい。なお、置換基は前記と同じである。また、アリーレン基の置換基同士が結合して、置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の六員環を形成してもよい。但し、Arが無置換フェニレンの場合、R¹~R⁴は、それぞれ炭素数1~6のアルコキシ基、炭素数7~18のアラルキル基、置換もしくは無置換のナフチル基、ビフェニル基、シクロヘキシル基、アリールオキシ基より選ばれたものである。]

【0010】また、その好ましい態様として、前記基板電極または対向電極の少なくとも一方が、光透過性であり、その光透過性電極の、発光層を含む有機物層が形成されていない側の面に、カラーフィルタ層を配設してなることを特徴とする有機EL発光装置が提供される。また、その好ましい態様として、前記発光体と蛍光体とを含有する三つの領域のうち各二つが形成する界面において、対向する二つの領域のそれぞれが、共通の有機化合

物を含有する部分を含むことを特徴とする有機EL発光装置が提供される。また、その好ましい態様として、前記発光体と蛍光体とを含有する三つの領域のそれぞれの厚さが、0.1nm～50nmであることを特徴とする有機EL発光装置が提供される。

【0011】さらにその好ましい態様として、前記発光層が、青色発光層、緑色発光層および赤色発光層をこの順に有する積層を、さらに一回以上繰返し積層したものであることを特徴とする有機EL発光装置が提供される。

【0012】

【発明の実施の形態】以下、本発明の有機EL発光装置の実施の形態を、図面を参照しつつ具体的に説明する。図1は、本発明の一の実施形態を模式的に示す断面図である。図1に示すように本発明の有機EL発光装置は、基板10上に、基板電極20、発光層を含む有機物層30、および対向電極40が順次積層して形成された複数の発光画素がそれぞれ分離して配置されている。ここで、発光画素とは、一の基板電極20と、一の対向電極40と、これらに挟持された発光層を含む有機物層30とを含み、これに所望の色を実現するため、必要に応じてカラーフィルタを備えたものであって、独立に点燈、非点燈の制御が可能な箇所のことを意味する。図1に示す発光画素をX-Yマトリクス上に配置し、所望の画素を点燈させることによりパターンや文字を表示することができる。

【0013】また、発光層が、青色発光層31、緑色発光層32、および赤色発光層33をこの順に有するものであり、また青色発光層31が、青色発光体に青色蛍光体を含有させた領域を有し、緑色発光層32が、青色発光体または緑色発光体に緑色蛍光体を含有させた領域を有し、かつ赤色発光層33が、青色発光体に赤色蛍光体を含有させた領域を有するものとしている。

【0014】ここで、青色発光体とは、固体状態で380～480nmの蛍光ピークを有する有機化合物を意味する。また、緑色発光体とは、固体状態で480～580nmの蛍光ピークを有する有機化合物を意味する。また、青色蛍光体とは、溶液状態での蛍光ピーク波長が、380～480nmである有機化合物を意味する。また、緑色蛍光体とは、溶液状態での蛍光ピーク波長が、480～580nmである有機化合物を意味する。また、赤色蛍光体とは、溶液状態での蛍光ピーク波長が、580～650nmである有機化合物を意味する。

【0015】また、蛍光体の発光体に対する含有割合は、0.1～10モル%が好ましく、さらに好ましくは、0.3～5モル%である。0.1モル%未満であると、蛍光体の発光強度が十分得られず、10モル%を超えると、蛍光の濃度消光が起り発光強度の低下や発光波長のずれが起る。

【0016】また、発光体と蛍光体とを含有する三つの

領域のそれぞれの厚さは、0.1～50nmであることが好ましく、5～40nmであることがさらに好ましい。0.1nm未満であると、薄膜が層を成さず、50nmを超えると、駆動電圧が上昇する。

【0017】さらに、前記発光体と蛍光体とを含有する三つの領域のうち各二つが形成する界面において、対向する二つの領域のそれぞれが、共通の有機化合物を含有する部分を含むことが好ましい。すなわち、緑色発光層が青色発光体に緑色蛍光体を含む構成であると、発光体として共通の材料が選べ素子作製上手間が軽減されることからさらに好ましい。

【0018】この実施形態においては、通常の有機EL素子におけるように、有機物層30、として、発光層31、32、33に加えて、正孔注入層34および電子注入層35を配設している。この層34、35はそれぞれ二層以上であってもよい。また、この実施形態においては、発光層31、32、33をB/G/Rの積層としているが、その一回以上の繰返し（たとえば、B/G/R/B/G/R等）を積層したものであってもよい。B、G、Rの積層順は、光を取り出す側からB/G/Rの順にすることが光の再吸収が小さいことから好ましい。

【0019】以下、本発明の有機EL発光装置に用いられる各構成要素について具体的に説明する。

【0020】1. 基板

本発明で用いられる基板としては、透明性を問わず、多色発光装置を支えるに十分な剛直な材料が好ましい。特に、高精細な表示をする場合には、有機EL素子と蛍光体層とのギャップが大きいと有機EL素子の発光が隣接する蛍光体層に吸収され所望の発光色が得られず、視野角を小さくしてしまう場合がある。そのため、透明な絶縁層の厚さを小さくする必要があるが、厚さを小さくすると、多色発光装置の耐衝撃性等の機械的強度を弱めることになる。本発明では、基板を配置することにより多色発光装置を補強して耐衝撃性等の機械的強度を高めている。

【0021】具体的な材料としては、例えば、ガラス板、セラミック板、プラスチック板（ポリカーボネート、アクリル、塩化ビニル、ポリエチレンテレフタレート、ポリイミド、ポリエステル樹脂等）、金属板、および後述する絶縁層と同じ材料からなる板等を挙げることができるが、もちろん、耐衝撃性等の機械的強度に優れた金属が好ましい。金属を用いることにより透明な絶縁層の厚さが小さく、基板の金属の厚さが小さい場合でも相当の補強効果がある。具体的には、ステンレス、鉄、銅、アルミニウム、マグネシウム、ニッケル、亜鉛、クロム、チタン、モリブデン、シリコン、ゲルマニウム、タンタルからなる群から選ばれる一種以上の金属または合金からなる材料が好ましい。このような材料は、エッチング処理等により、空隙形成の加工性に優

れ、しかも基板として剛直な材料であって、コスト的に安価な材料であるので好ましい。また、先述のように、空隙を形成した際に、空隙の側面に金属光沢を出すこともできるので、蛍光体層からの発光を反射または散乱して、効率よく光を取り出し視認性に優れた多色発光装置を得ることができる。基板の板厚は、特に制限はないが、高精細表示を行う多色発光装置については空隙の形成を高精細にしなければならないので、多色発光装置を支える剛直さがあって可能な限り薄くすることが必要である。通常は $5\mu\text{m}\sim 5\text{mm}$ の範囲であり、好ましくは、 $7\mu\text{m}\sim 700\mu\text{m}$ さらに好ましくは、 $10\mu\text{m}\sim 300\mu\text{m}$ である。

【0022】2. 基板電極

基板電極としては、仕事関数の大きい(4eV 以上)金属、合金、電気伝導性化合物またはこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としては、Au等の金属、CuI, IT O, SnO_2 , ZnO 等の導電性透明材料が挙げられる。基板電極は、これらの電極物質を蒸着法やスパッタリング法等の方法で、薄膜を形成させることにより作製することができる。このように発光層からの発光を基板から取り出す場合、基板電極の発光に対する透過率が10%より大きくすることが好ましい。また、基板電極のシート抵抗は、数百 Ω/\square 以下が好ましい。基板電極の膜厚は材料にもよるが、通常 $10\text{nm}\sim 1\mu\text{m}$ 、好ましくは $10\sim 200\text{nm}$ の範囲である。

【0023】3. 対向電極

対向電極としては、仕事関数の小さい(4eV 以下)金属、合金、電気伝導性化合物およびこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム-銀合金、アルミニウム/酸化アルミニウム(Al_2O_3)、アルミニウム-リチウム合金、インジウム、希土類金属などが挙げられる。この対向電極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリングなどの方法により、薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、対向電極としてのシート抵抗は数百 Ω/\square 以下が好ましく、膜厚は通常 $10\text{nm}\sim 1\mu\text{m}$ 、 $50\sim 200\text{nm}$ の範囲が好ましい。なお、本発明に用いられるEL素子においては、該基板電極または対向電極のいずれか一方が透明または半透明であることが、発光を透過するため、発光の取り出し効率がよいので好ましい。

【0024】本発明においては、基板電極または対向電極の少なくとも一方は、光透過性であることが、発光を取り出すことから好ましく、またその光透過性電極の、発光層を含む有機物層が形成されていない側の面にカラーフィルタやブラックマトリックスを配設することが色純度を向上させること等から好ましい。

【0025】本発明に用いられるカラーフィルタとして

は、たとえば、下記の色素のみまたは、色素をバインダー樹脂中に溶解または分散させた固体状態のものを挙げることができる。

【0026】赤色(R)色素：ペリレン系顔料、レーキ顔料、アゾ系顔料、キナクリドン系顔料、アントラキノン系顔料、アントラセン系顔料、イソインドリン系顔料、イソインドリノン系顔料等の単品および少なくとも二種類以上の混合物

【0027】緑色(G)色素：ハロゲン多置換フタロシアニン系顔料、ハロゲン多置換銅フタロシアニン系顔料、トリフェルメタン系塩基性染料、イソインドリン系顔料、イソインドリノン系顔料等の単品および少なくとも二種類以上の混合物

【0028】青色(B)色素：銅フタロシアニン系顔料、インダンスロン系顔料、インドフェノール系顔料、シアニン系顔料、ジオキサジン系顔料等の単品および少なくとも二種類以上の混合物

【0029】一方、バインダー樹脂は、透明な(可視光50%以上)材料が好ましい。たとえば、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂(高分子)が挙げられる。

【0030】なお、カラーフィルタを平面的に分離配置するために、フォトリソグラフィ法が適用できる感光性樹脂も選ばれる。たとえば、アクリル酸系、メタクリル酸系、ポリケイ皮酸ビニル系、環ゴム系等の反応性ビニル基を有する光硬化型レジスト材料が挙げられる。また、印刷法を用いる場合には、透明な樹脂を用いた印刷インキ(メジウム)が選ばれる。たとえば、ポリ塩化ビニル樹脂、メラミン樹脂、フェノール樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリエステル樹脂、マレイン酸樹脂、ポリアミド樹脂のモノマー、オリゴマー、ポリマーまた、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂を用いることができる。

【0031】カラーフィルタが主に色素からなる場合は、所望のカラーフィルタパターンをマスクを介して真空蒸着またはスパッタリング法で成膜され、一方、色素とバインダー樹脂からなる場合は、蛍光色素と上記樹脂およびレジストを混合、分散または可溶化させ、スピンコート、ロールコート、キャスト法等の方法で製膜し、フォトリソグラフィ法で所望のカラーフィルタパターンでパターンニングしたり、印刷等の方法で所望のカラーフィルタのパターンでパターンニングするのが一般的である。

【0032】それぞれのカラーフィルタの膜厚と透過率は、下記とすることが好ましい。

R: 膜厚0.5~5.0 μ m (透過率50%以上/610nm), G: 膜厚0.5~5.0 μ m (透過率50%以上/545nm), B: 膜厚0.2~5.0 μ m (透過率50%以上/460nm)

【0033】また、特にカラーフィルタが色素とバインダー樹脂からなるものは、色素の濃度が、カラーフィルタが問題なくパターンニングできて、かつ、有機EL素子の発光を十分透過できる範囲であればよい。色素の種類にもよるが、使用するバインダー樹脂を含めたカラーフィルタ膜中に色素が5~50重量%含まれる。

【0034】本発明に用いられるブラックマトリックスとしては、たとえば、下記の金属および金属酸化物薄膜、並びに黒色色素を挙げることができる。金属および金属酸化物薄膜の具体例としては、クロム(Cr)、ニッケル(Ni)、銅(Cu)等の金属およびその酸化物の薄膜を挙げることができる。上記金属および金属酸化物の混合物としては、光学濃度3.0以上(膜厚100~3000オングストローム)のものが好ましい。

【0035】黒色色素の具体例としては、カーボンブラック、チタンブラック、アニリンブラックまたはカラーフィルタの色素を混合して、黒色化したもの、またはカラーフィルタと同じように上記色素をバインダー樹脂中に溶解または分散させた固体状態のものを挙げることができる。

【0036】金属および金属酸化物薄膜は、スパッタリング法、蒸着法、CVD法等により絶縁性基板全面か、マスキングの手法により少なくとも表示部全面に成膜後、フォトリソグラフィ法によりパターンニングを行って、ブラックマトリックスのパターンを形成することができる。

【0037】黒色色素を用いた場合は、カラーフィルタの場合と同様にパターンニングして、ブラックマトリックスを形成することができる。

【0038】4. 発光層を含む有機物層

(1) 発光層

青色発光体に用いる有機化合物は、特に限定されず、例えば特開平3-231970号公報あるいは国際公開特許WO92/05131号公報、特願平5-170354号明細書、特願平5-129438号明細書に記載されている有機化合物の中で、上記青色発光体の蛍光条件を満足するものが挙げられる。好ましいものとしては、特開平3-231970号公報、国際公開特許WO92/05131号公報、特願平5-170345号明細書に記載されている上記青色発光体の蛍光条件を満たすものと、特願平5-129438号明細書に記載されている適当な化合物との組合せ、さらには後述する正孔注入輸送層に用いる化合物のなかで、上記青色発光体の蛍光条件を満足するものを挙げることができる。次に、特開

平3-231970号公報、国際公開特許WO92/05131号公報に記載されている上記青色発光体の蛍光条件を満たす化合物としては、前記一般式(I)

【0039】

【化1】

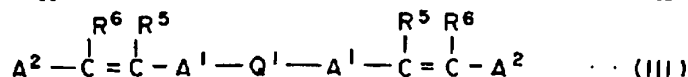
【0040】[式中、 $R^1 \sim R^4$ は、それぞれ水素原子、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~6のアルコキシ基、炭素数7~18のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6~18のアリール基、置換もしくは無置換の芳香族複素環式基、置換もしくは無置換のシクロヘキシル基、置換もしくは無置換の炭素数6~18のアリールオキシ基、置換もしくは無置換のピリジル基を示す。ここで、置換基は炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~6のアルコキシ基、炭素数7~18のアラルキル基、炭素数6~18のアリールオキシ基、炭素数1~6のアシル基、炭素数1~6のアシルオキシ基、カルボキシ基、スチリル基、炭素数6~20のアリールカルボニル基、炭素数6~20のアリールオキシカルボニル基、炭素数1~6のアルコキシカルボニル基、ビニル基、アニリノカルボニル基、カルバモイル基、フェニル基、ニトロ基、水酸基あるいはハロゲン原子を示す。これらの置換基は単一でも複数でもよい。また、 $R^1 \sim R^4$ は同一でも、また互いに異なってもよく、 R^1 と R^2 及び R^3 と R^4 は互いに置換している基と結合して、置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の六員環を形成してもよい。Arは置換もしくは無置換の炭素数6~20のアリーレン基を表し、単一置換されていても、複数置換されていてもよく、また結合部位は、オルト、パラ、メタいずれでもよい。なお、置換基は前記と同じである。また、アリーレン基の置換基同士が結合して、置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の六員環を形成してもよい。但し、Arが無置換フェニレンの場合、 $R^1 \sim R^4$ は、それぞれ炭素数1~6のアルコキシ基、炭素数7~18のアラルキル基、置換もしくは無置換のナフチル基、ビフェニル基、シクロヘキシル基、アリールオキシ基より選ばれたものである。]で表されるジスチリルアリーレン系化合物、一般式(II)

40 $A-Q-B \quad \dots (II)$

[式中、A及びBは、それぞれ上記一般式(I)で表される化合物から1つの水素原子を除いた一価基を示し、同一であっても異なってもよい。また、Qは共役系を切る二価基を示す。]で表される芳香族メチリデン化合物及び一般式(II)

【0041】

【化2】



【0042】〔式中、 A^1 は置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリーレン基又は二価の芳香族複素環式基を示す。結合位置はオルト、メタ、パラのいずれでもよい。 A^2 は置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリーレン基又は一価の芳香族複素環式基を示す。 R^5 及び R^6 は、それぞれ水素原子、置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリーレン基、シクロヘキシル基、一価の芳香族複素環式基、炭素数1～10のアルキル基、炭素数7～20のアラルキル基又は炭素数1～10のアルコキシ基を示す。なお、 R^5 、 R^6 は同一でも異なってもよい。ここで、置換基とは、アルキル基、アリールオキシ基、アミノ基又はこれらの基を有するもしくは有しないフェニル基であり、該置換基は単一でも複数でもよい。 R^5 の各置換基は A^1 と結合して、飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を形成してもよく、同様に R^6 の各置換基は A^2 と結合して、飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を形成してもよい。また、 Q^1 は前記と同じである。〕で表される芳香族メチリデン化合物が挙げられる。

【0043】ここで、一般式(I)中の $R^1 \sim R^4$ は前述の如く同一でも異なってもよく、それぞれ水素原子、炭素数1～6のアルキル基(メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、イソペンチル基、t-ペンチル基、ネオペンチル基、イソヘキシル基)、炭素数1～6のアルコキシ基(メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基等)、炭素数1～8のアラルキル基(ベンジル基、フェネチル基等、炭素数6～18のアリーレン基(フェニル基、ビフェニル基、ナフチル基等)、シクロヘキシル基、芳香族複素環式基(ピリジル基、キノリル基)、炭素数6～8のアリールオキシ基(フェノキシ基、ビフェニルオキシ基、ナフチルオキシ基等)を示す。

【0044】また、 $R^1 \sim R^4$ は、これらに置換基の結合したものでよい。即ち、 $R^1 \sim R^4$ はそれぞれ置換基含有フェニル基、置換基含有アラルキル基、置換基含有シクロヘキシル基、置換基含有ビフェニル基、置換基含有ナフチル基を示す。ここで、置換基は炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数7～18のアラルキル基、炭素数6～18のアリールオキシ基、炭素数1～6のアシル基、炭素数1～6のアシルオキシ基、カルボキシル基、スチリル基、炭素数6～20のアリールカルボニル基、炭素数6～20のアリールオキシカルボニル基、炭素数1～6のアルコキシカルボニル基、ビニル基、アニリノカルボニル基、カルバモイル基、フェニル基、ニトロ基、水酸基あるいはハロゲン原子であり、複数置換されていてもよい。したがって、

例えば、置換基含有アラルキル基は、アルキル基置換アラルキル基(メチルベンジル基、メチルフェネチル基等)、アルコキシ基置換アラルキル基(メトキシベンジル基、エトキシフェネチル基等)、アリールオキシ基置換アラルキル基(フェノキシベンジル基、ナフチルオキシフェネチル基等)、フェニル基置換アラルキル基(フェニルフェネチル基等)、上記置換基含有フェニル基は、アルキル基置換フェニル基(トリル基、ジメチルフェニル基、エチルフェニル基など)、アルコキシ基置換フェニル基(メトキシフェニル基、エトキシフェニル基など)アリールオキシ基置換フェニル基(フェノキシフェニル基、ナフチルオキシフェニル基等)あるいはフェニル基置換フェニル基(つまり、ビフェニル基)である。また、置換基含有シクロヘキシル基は、アルキル基置換シクロヘキシル基(メチルシクロヘキシル基、ジメチルシクロヘキシル基、エチルシクロヘキシル基等)、アルコキシ基置換シクロヘキシル基(メトキシシクロヘキシル基、エトキシシクロヘキシル基等)あるいはアリールオキシ基置換シクロヘキシル基(フェノキシシクロヘキシル基、ナフチルオキシシクロヘキシル基)、フェニル基置換シクロヘキシル基(フェニルシクロヘキシル基)である。置換基含有ナフチル基は、アルキル基置換ナフチル基(メチルナフチル基、ジメチルナフチル基等)、アルコキシ基置換ナフチル基(メトキシナフチル基、エトキシナフチル基等)あるいはアリールオキシ基置換ナフチル基(フェノキシナフチル基、ナフチルオキシナフチル基)、フェニル基置換ナフチル基(フェニルナフチル基)である。

【0.0.4.5】上記 $R^1 \sim R^4$ としては、上述したもののうち、それぞれ炭素数1～6のアルキル基、アリールオキシ基、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、シクロヘキシル基が好ましい。これらは置換あるいは無置換のいずれでもよい。また、 $R^1 \sim R^4$ は同一でも、また互いに異なってもよく、 R^1 と R^2 及び R^3 と R^4 は互いに置換している基と結合して、置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の六員環を形成してもよい。

【0046】一方、一般式(I)中のArは置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリーレン基を表し、置換もしくは無置換のフェニレン基、ビフェニレン基、p-テルフェニレン基、ナフチレン基、ターフェニレン基、ナフタレンジイル基、アントラセンジイル基、フェナントレンジイル基、フェナレンジイル基等のアリーレン基であり、無置換でも置換されていてもよい。又、メチリデン(=C=CH-)の結合位置はオルト、メタ、パラ等どこでもよい。但し、Arが無置換フェニレンの場合、 $R^1 \sim R^4$ は炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数

13

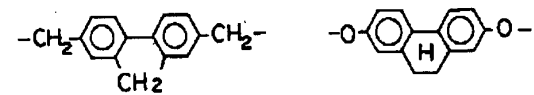
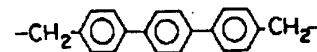
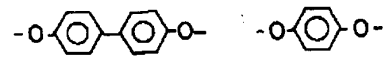
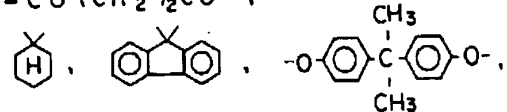
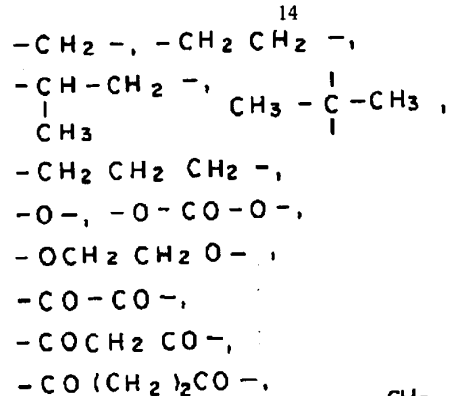
7~18のアラルキル基、置換あるいは無置換のナフチル基、ビフェニル基、シクロヘキシル基、アリールオキシ基より選ばれたものである。置換基はアルキル基（メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、イソペンチル基、tert-ペンチル基、ネオペンチル基、イソヘキシル基等）、アルコキシ基（メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブチルオキシ基、イソブチルオキシ基、sec-ブチルオキシ基、tert-ブチルオキシ基、イソペンチルオキシ基、tert-ペンチルオキシ基）、アリールオキシ基（フェノキシ基、ナフチルオキシ基等）、アシル基（ホルミル基、アセチル基、プロピオニル基、ブチリル基等）、アシルオキシ基、アラルキル基（ベンジル基、フェネチル基等）、フェニル基、水酸基、カルボキシ基、アニリノカルボニル基、カルバモイル基、アリールオキシカルボニル基、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、ブトキシカルボニル基、ニトロ基、ハロゲン原子であり、単一置換でも複数置換されていてもよい。

【0047】前記一般式（I）で表されるメチリディン芳香族化合物は、1分子中に2つのメチリディン（ $=C=CH-$ ）基を有し、このメチリディン基の幾何異性によって、4通りの組合せ、すなわち、シス-シス、トランス-シス、シス-トランス及びトランス-トランスの組合せがある。本発明に用いられるEL素子における青色発光体は、それらのいずれのものであってもよいし、幾何異性体の混合したものでよい。特に好ましくは、全てトランス体のものである。また、上記置換基は、置換基の間で結合し、置換、無置換の飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を形成してもよい。

【0048】一般式（II）におけるA及びBは、それぞれ上記一般式（I）で表される化合物から1つの水素原子を除いた一価基を示し、同一であっても異なってもよいものである。ここで、一般式（II）におけるQは共役系を切る二価基を示す。ここで、共役とは、 π 電子の非極性によるもので、共役二重結合あるいは不対電子又は孤立電子対によるものも含む。Qの具体例としては、

【0049】

【化3】



【0050】が挙げられる。このように共役系を切る二価の基を用いる理由は、上記で示されるAあるいはB（即ち、一般式（I）の化合物）を、単独で本発明の有機EL素子として用いた場合に得られるEL発光色と、一般式（II）で表される化合物を本発明の有機EL素子として用いた場合に得られるEL発光色とが変わらぬようにするためである。つまり、一般式（I）又は一般式（I'）で表される青色発光体が、短波長化あるいは長波長化したりすることはないようにするためである。また、共役系を切り二価基で接続するとガラス転移温度（ T_g ）は、上昇することが確認でき、均一なピンホールフリーの微結晶あるいはアモルファス性薄膜が得られることができ、発光均一性を向上させている。更に、共役系を切る二価基で結合していることにより、EL発光が長波長化することなく、また、合成あるいは精製が容易にできる長所を備えている。

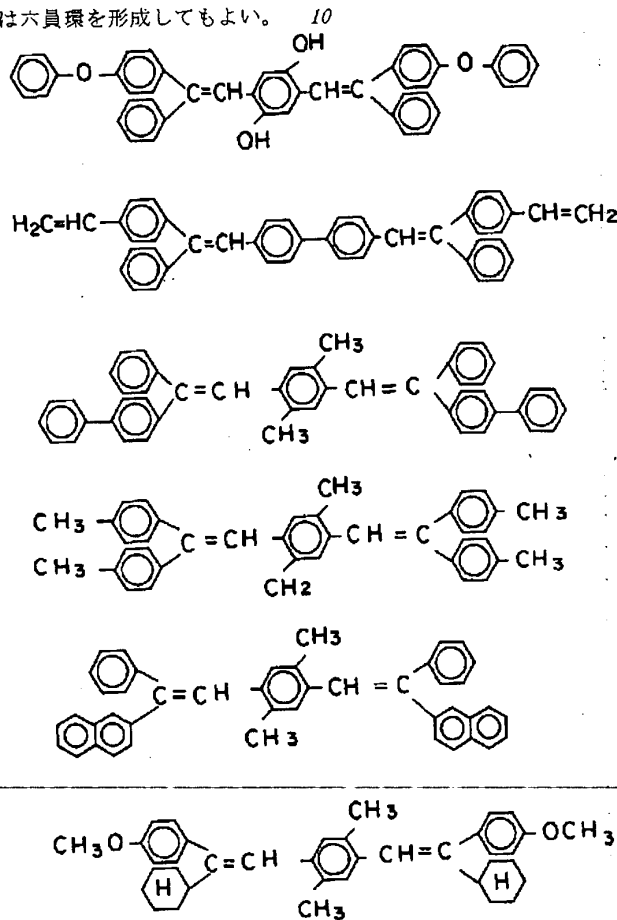
【0051】また、一般式（III）中の A^1 は置換もしくは無置換の炭素数6~20のアリーレン基又は二価の芳香族複素環式基、 A^2 は置換もしくは無置換の炭素数6~20のアリーレン基（フェニル基、ビフェニル基、ナフチル基等）又は一価の芳香族複素環式基を示す。 R^5 及び R^6 は、それぞれ水素原子、置換もしくは無置換の炭素数6~20のアリーレン基、シクロヘキシル基、一価の芳香族複素環式基、炭素数1~10のアルキル基（メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、イソペンチル基、tert-ペンチル基、ネオペンチル基、イソヘキシル基等）、炭素数7~20のアラ

ルキル基（ベンジル基、フェネチル基等）又は炭素数1～10のアルコキシ基（メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基等）を示す。なお、 R^5 、 R^6 は同一でも異なってもよい。ここで、置換基とは、アルキル基、アリールオキシ基、アミノ基又はこれらの基を有するもしくは有しないフェニル基であり、該置換基は単一でも複数でもよい。 R^5 の各置換基は A^1 と結合して、飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を形成してもよく、同様に R^6 の各置換基は A^2 と結合して、飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を形成してもよい。

また、Qは、上記と同様に共役を切る二価基を表す。さらに、該 A^1 の結合はオルト、メタ、パラのいずれでもよい。さらに、本発明において、上記の一般式(I)、一般式(II)又は一般式(III)で表される有機化合物は、CIE色度座標における青紫、紫青、青、緑青もしくは青緑の発光を呈する化合物であることが必要である。具体的には、

【0052】

【化4】

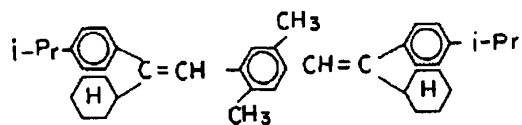
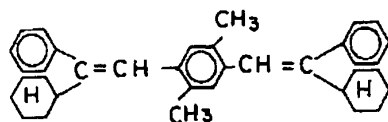


【0053】

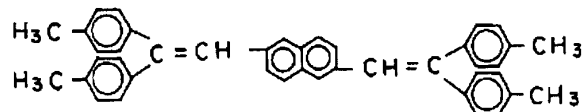
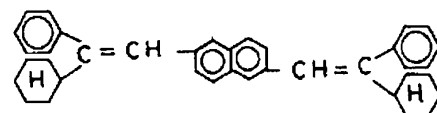
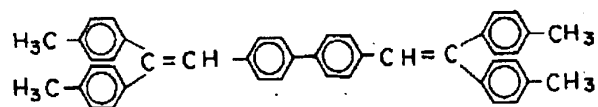
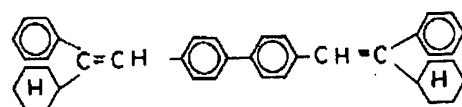
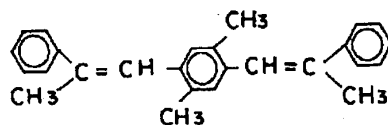
【化5】

17

18

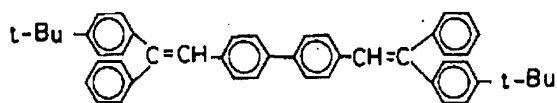
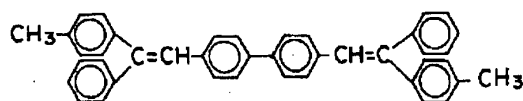
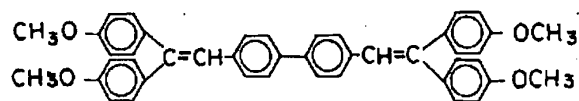
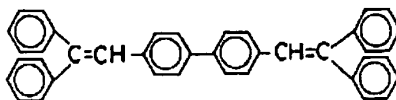
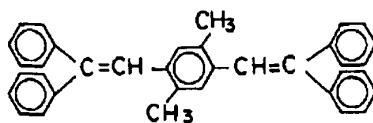


i-pr: イソプロピル基, 以下同様

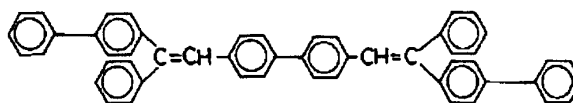


【0054】

【化6】



t-Bu: t-ブチル基, 以下同様



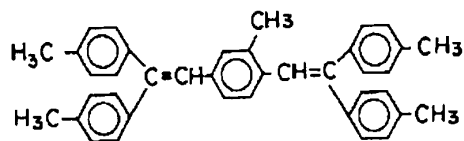
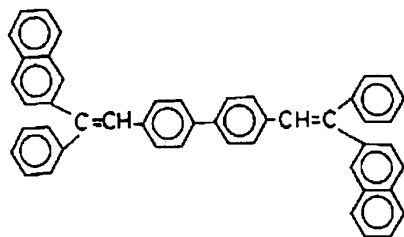
【0055】

【化7】

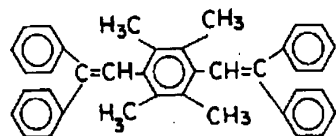
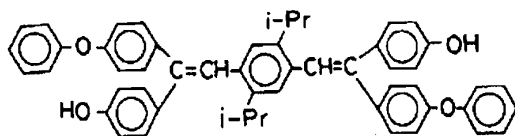
21

【0056】

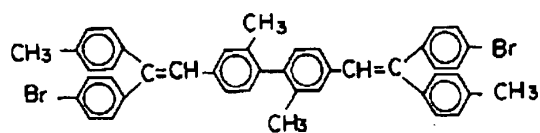
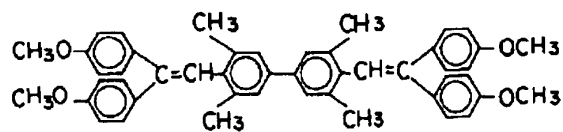
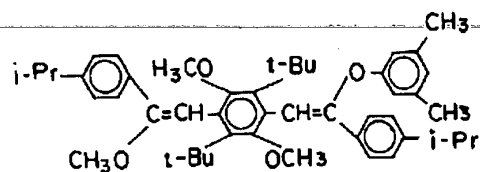
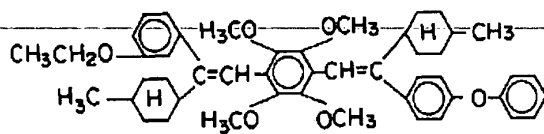
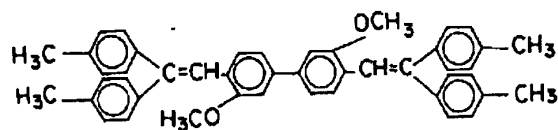
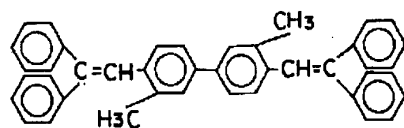
【化8】



10

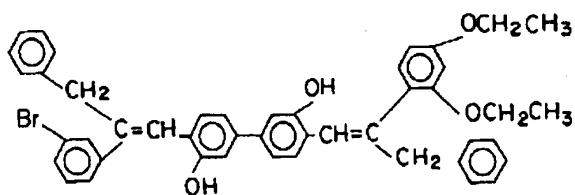
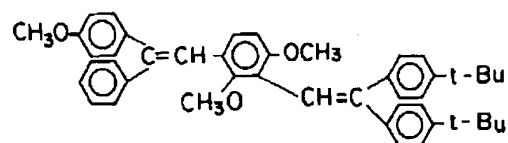
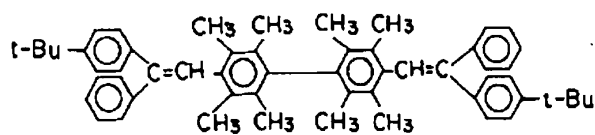
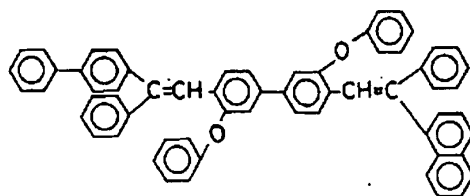


20



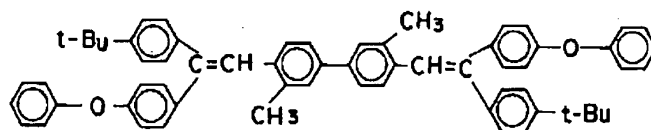
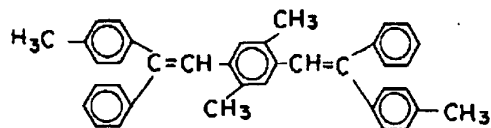
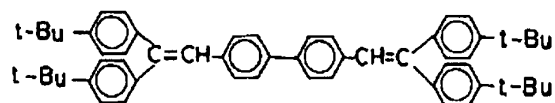
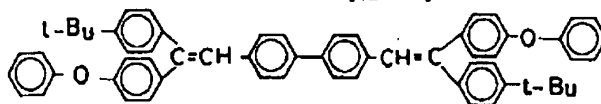
【0057】

50. 【化9】



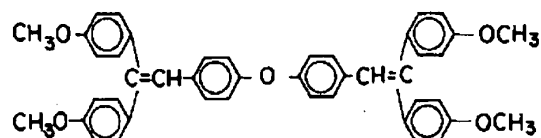
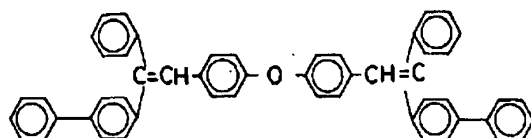
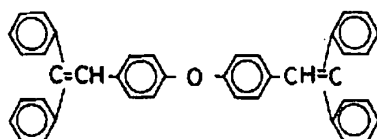
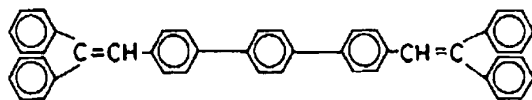
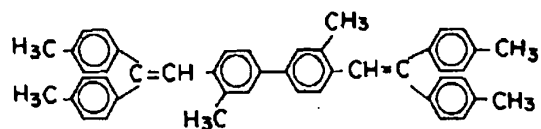
【0058】

【化10】



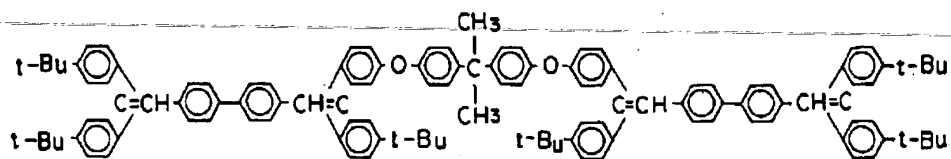
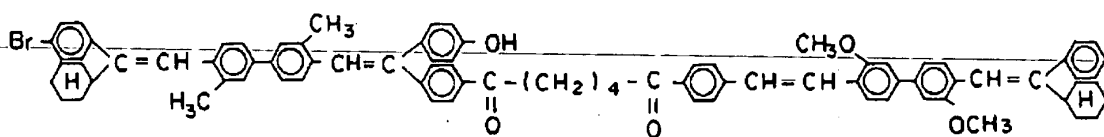
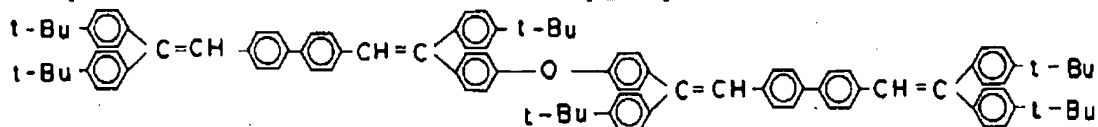
【0059】

【化11】



【0060】

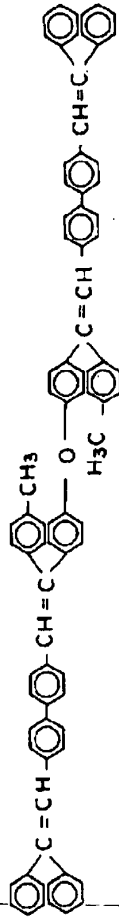
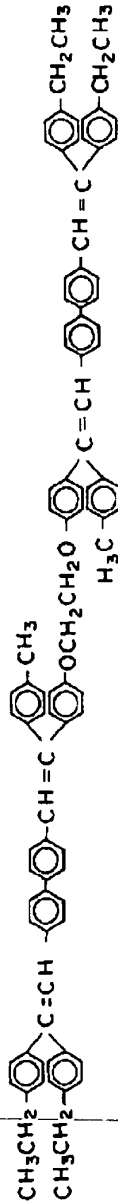
【化12】



【0061】

【化13】

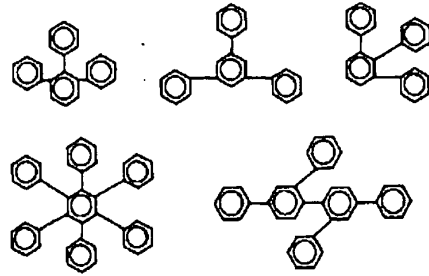
27



28

【0062】などである。他の有機化合物としては、
【0063】
【化14】

10

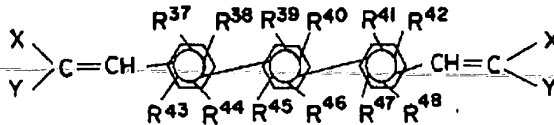


【0064】なども挙げられる。また、特願平5-170354号明細書に記載されている上記青色発光体の蛍光条件を満たす化合物としては、一般式 (XI)

【0065】
【化15】

20

30



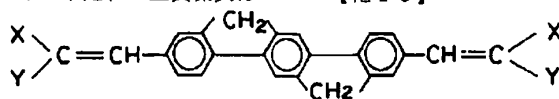
【0066】〔式中、 $R^{37} \sim R^{48}$ は、それぞれ独立に水素原子又は炭素数1～6のアルキル基を示す。但し、 $R^{37} \sim R^{48}$ のうち少なくとも1つは炭素数1～6のアルキル基である。また、 R^{38} と R^{39} 、 R^{40} と R^{41} 、 R^{44} と R^{45} 、 R^{46} と R^{47} は、互いに結合して飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を形成してもよい。X及びYはそれぞれ独立に置換又は無置換の炭素数6～20のアリール基を示す。XとYは置換基と結合して置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは六員環を形成してもよい。ここで、置換基としては炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数6～18のアリールオキシ基、フェニル基、アミノ基、シアノ基、

ニトロ基、水酸基あるいはハロゲン原子を示す。これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。〕で表されるターフェニレン誘導体のスチリル化合物を挙げることができる。

【0067】ここで、一般式 (XI) において、 $R^{37} \sim R^{48}$ は、それぞれ独立に水素原子あるいはメチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基、イソペンチル基、*tert*-ペンチル基、ネオペンチル基、*n*-ヘキシル基、イソヘキシル基などの炭素数1～6のアルキル基を示す。但し、 $R^{37} \sim R^{48}$ のうち少なくとも1つは炭素数1～6のアルキル基であり、特にメチル基又

29

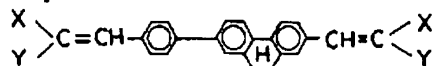
はエチル基が好ましい。また、 R^{38} と R^{39} 、 R^{40} と R^{41} 、 R^{44} と R^{45} 、 R^{46} と R^{47} は、互いに結合して飽和もしくは不飽和の五員環又は飽和もしくは不飽和の六員環を形成してもよい。飽和もしくは不飽和の五員環又は



【0069】などが挙げられ、 R^{46} と R^{47} で飽和六員環を形成する場合は、

【0070】

【化17】



【0071】などが挙げられる。X及びYは、それぞれ独立に置換または無置換のフェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、ターフェニル基、アントラリル基、フェナントリル基、ピレニル基、ペリレニル基など炭素数6～20のアリール基を示す。ここで、置換基としては、例えばメチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基、イソペンチル基、*tert*-ペンチル基、ネオペンチル基、*n*-ヘキシル基、イソヘキシル基など

30

六員環を有するスチリル化合物の例としては、 R^{38} と R^{39} 、及び R^{46} と R^{47} が飽和五員環を形成する場合は、

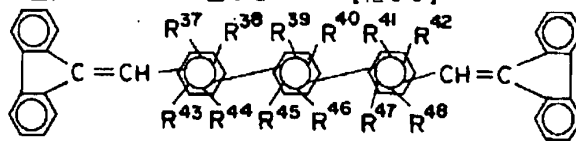
【0068】

【化16】

の炭素数1～6のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、*n*-プロポキシ基、イソプロポキシ基、*n*-ブチルオキシ基、イソブチルオキシ基、*sec*-ブチルオキシ基、イソペンチルオキシ基、*tert*-ペンチルオキシ基、*n*-ヘキシルオキシ基などの炭素数1～6のアルコキシ基、フェノキシ基、ナフチルオキシ基など炭素数6～18のアリールオキシ基、フェニル基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基あるいはハロゲン原子が挙げられる。これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。また、XとYは置換基と結合して置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは飽和又は不飽和の六員環を形成してもよい。飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を有するスチリル化合物の例としては、XとYが飽和五員環を形成する場合は、

【0072】

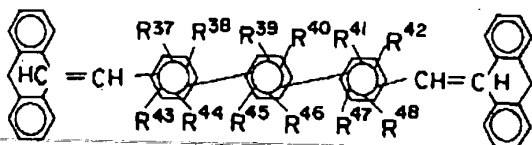
【化18】



【0073】などが挙げられ、XとYが飽和六員環形成する場合は、

【0074】

【化19】



【0075】などが挙げられる。

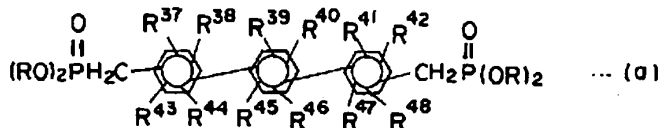
【0076】上記一般式(XI)で表されるスチリル化合物は、種々の公知の方法によって製造することができる。具体的には、次の2つの方法が挙げられる。

方法1

一般式(a)

【0077】

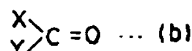
【化20】



【0078】【式中、Rは炭素数1～4のアルキル基又はフェニル基を示し、 R^{37} ～ R^{48} は前記と同じである。】で表されるホスホン酸エステルと、一般式(b)

【0079】

【化21】



【0080】【式中、X、Yは前記と同じである。】で

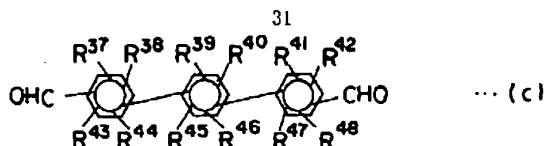
表されるカルボニル化合物を塩基存在下で縮合する方法(Witting反応又はWitting-Horner反応)により合成することができる。

方法2

一般式(c)

【0081】

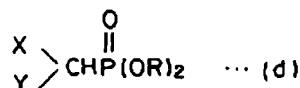
【化22】



【0082】〔式中、 $\text{R}^{37} \sim \text{R}^{48}$ は前記と同じである。〕で表されるジアルデヒド化合物と一般式(d)

【0083】

【化23】



【0084】〔式中、 R 、 X 、 Y は前記と同じである。〕で表されるホスホン酸エステルを塩基存在下で縮合する方法(Witting反応又はWitting-Horner反応)により合成することができる。

【0085】この合成で用いる反応溶媒としては、炭化水素、アルコール類、エーテル類が好ましい。具体的には、メタノール；エタノール；イソプロパノール；ブタノール；2-メトキシエタノール；1, 2-ジメトキシ

32

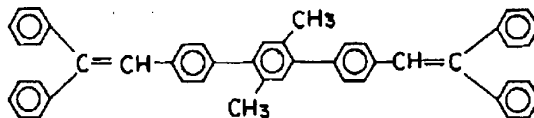
エタン；ビス(2-メトキシエチル)エーテル；ジオキサン；テトラヒドロフラン；トルエン；キシレン；ジメチルスルホキシド； N 、 N -ジメチルホルムアミド； N -メチルピロリドン；1, 3-ジメチル-2-イミダゾリジノンなどが挙げられる。特に、テトラヒドロフラン、ジメチルスルホキシドが好適である。また、縮合剤としては、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、ナトリウムアミド、水素化ナトリウム、 n -ブチルリチウム、ナトリウムメチラート、カリウム- t -ブトキシドなどが好ましく、特に n -ブチルリチウム、カリウム- t -ブトキシドが好ましい。反応温度は、用いる反応原料の種類などにより異なり、一義的に定めることはできないが、通常は $0^\circ\text{C} \sim$ 約 100°C までの広範囲を指定できる。特に好ましくは $0^\circ\text{C} \sim$ 室温の範囲である。

【0086】以下に、本発明で用いられる上記スチル化合物の具体例(1)～(26)を挙げるが、本発明はそれらに限定されるものではない。

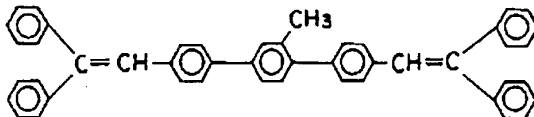
【0087】

【化24】

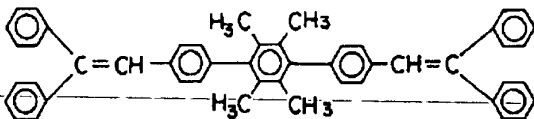
(1)



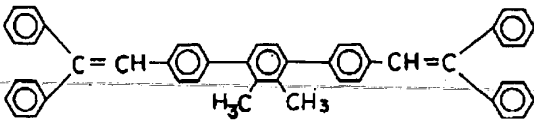
(2)



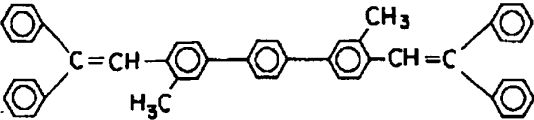
(3)



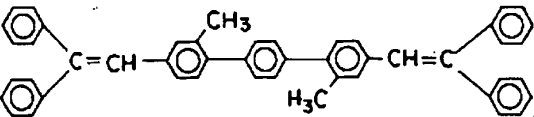
(4)



(5)

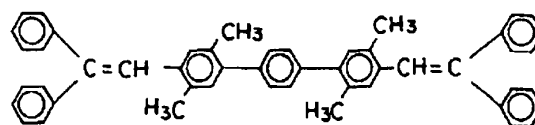


(6)



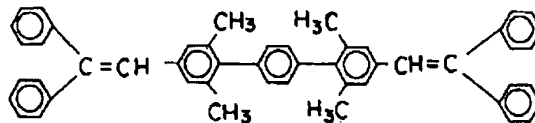
【0088】

【化25】

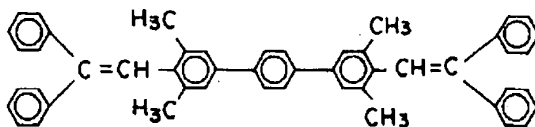
33
(7)

34

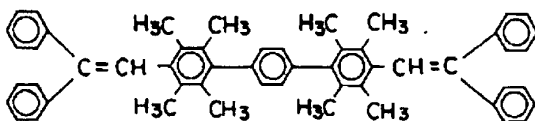
(8)



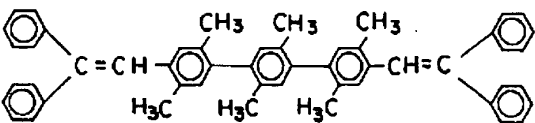
(9)



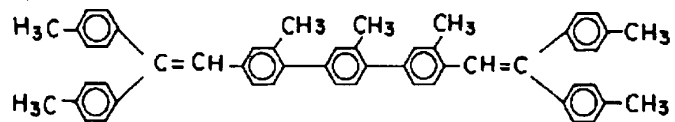
(10)



(11)

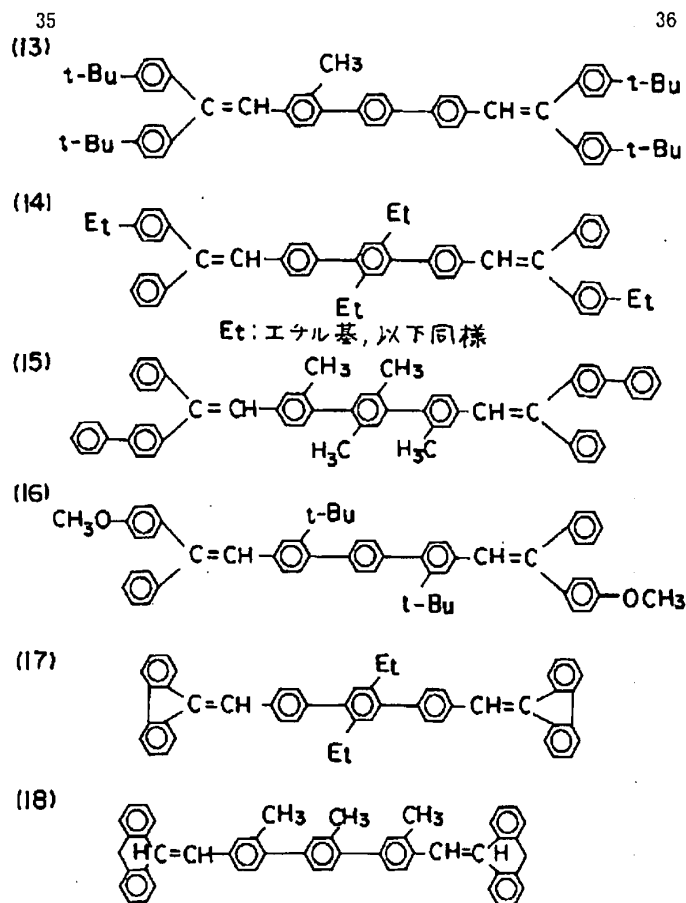


(12)



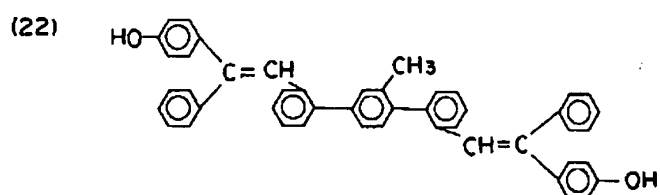
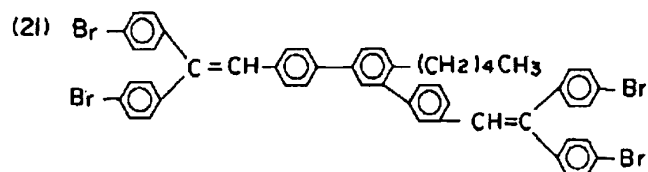
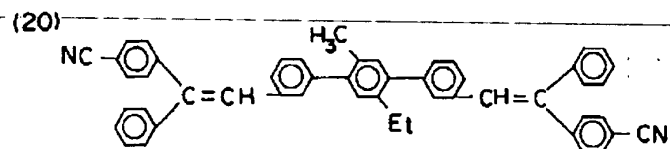
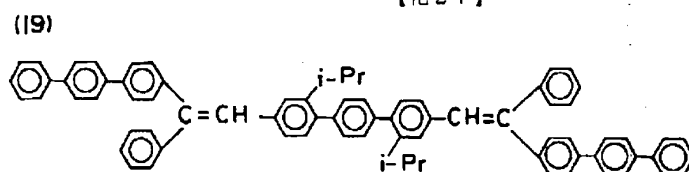
[0089]

[化26]



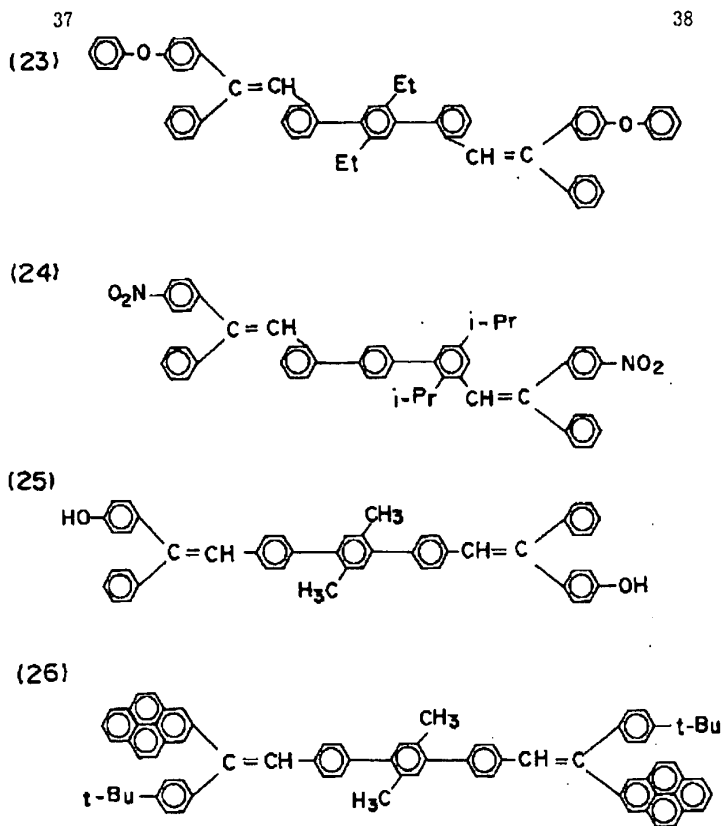
【0090】

【化27】



【0091】

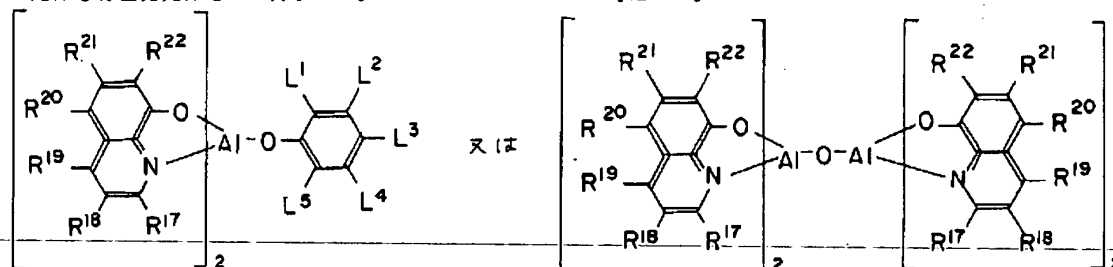
【化28】



【0092】その他、下記構造式に示すようなアルミニウム錯体も青色発光体として好ましい。

【0093】

【化29】



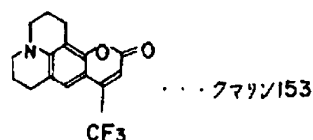
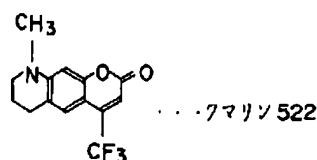
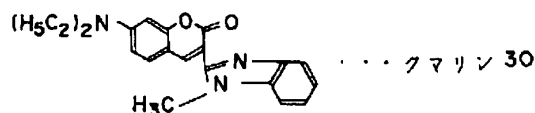
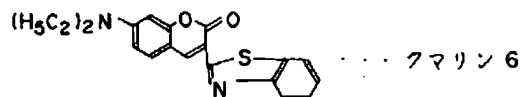
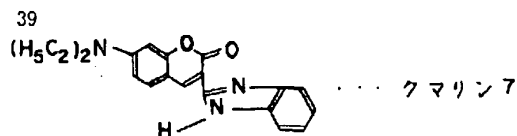
【0094】〔式中、 $R^{17} \sim R^{19}$ は、各々独立に、水素原子、メチル基等のアルキル基、 $R^{20} \sim R^{22}$ は各々独立に水素原子、ハロゲン原子、 α -ハロアルキル基、 α -ハロアルコキシ基、アミド基、カルボニル基、スルフォニル基、カルボニルオキシ基、オキシカルボニル基、アリル基等を示す。また、 $L^1 \sim L^5$ は、各々独立に、水素原子、炭素数1～12の炭化水素基を示し、 L^1 と L^2 、 L^2 と L^3 は互いに結合して芳香環を形成していてもよい。〕等が挙げられる。有機発光層31、32、33の膜厚は、通常、0.1～200nm、好ましくは

0.1～50nm、さらに好ましくは1～40nmである。

【0095】一方、緑色発光体に用いられる、固体状態の蛍光ピーク波長が480nm以上580nm未満である有機化合物については、特に制限はなく、例えばヨーロッパ公開特許第0281381号公報に記載されているレーザー色素として用いられるクマリン誘導体が挙げられる。具体的には、

【0096】

【化30】

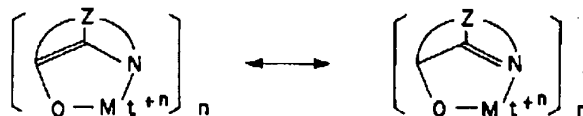


【0097】などである。さらに、特開平3-231970号公報あるいは特開平2-279304号明細書に記載されている有機化合物中で上記緑色発光体の蛍光条件を満足するものが挙げられる。さらに、好ましいものとして、8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体を挙げることができる。具体的には、オキシシン（一般に8-キノリノール又は8-ヒドロキシキノリン）の

キレートを含む金属キレートオキシノイド化合物である。このような化合物は高水準の性能を示し、容易に薄膜形態に成形される。オキシノイド化合物の例は下記構造式を満たすものである。

【0098】

【化31】



【0099】〔式中、Mtは金属を表し、nは1～3の整数であり、且つ、Zはその各々の位置が独立であつて、少なくとも2以上の縮合芳香族環を完成させるために必要な原子を示す。〕ここで、Mtで表される金属は、一価、二価又は三価の金属とすることができるものであり、例えばリチウム、ナトリウム又はカリウム等のアルカリ金属、マグネシウム又はカルシウム等のアルカリ土類金属、ホウ素又はアルミニウム等の土類金属である。一般に有用なキレート化合物であると知られている一価、二価又は三価の金属はいずれも使用することができる。

【0100】また、Zは少なくとも2以上の縮合芳香族環の一方がアゾール又はアジンからなる複素環を形成させる原子を示す。ここで、もし必要であれば、上記縮合芳香族環に他の異なる環を付加することが可能である。また、機能上の改善が無いまま嵩ばった分子を付加することを回避するため、Zで示される原子の数は18以下に維持することが好ましい。

【0101】さらに、具体的にキレート化オキシノイド化合物を例示すると、トリス（8-キノリノール）アルミニウム、ビス（8-キノリノール）マグネシウム、ビス（8-キノリノール）亜鉛、ビス（2-メチル-8-

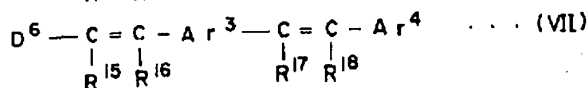
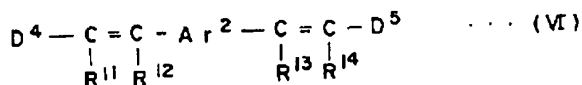
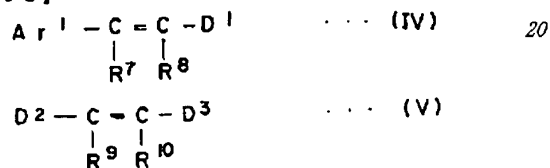
キノリノール）亜鉛、ビス（ベンゾ-8-キノリノール）亜鉛、ビス（2-メチル-8-キノリノール）アルミニウムオキシド、トリス（8-キノリノール）インジウム、トリス（5-メチル-8-キノリノール）アルミニウム、8-キノリノールリチウム、トリス（5-クロロ-8-キノリノール）ガリウム、トリス（2-メチル-8-キノリノール）ガリウム、ビス（5-クロロ-8-キノリノール）カルシウム、5, 7-ジクロロ-8-キノリノールアルミニウム、トリス（5, 7-ジプロモ-8-ヒドロキシキノリノール）アルミニウム、トリス（7-プロピル-8-キノリノール）キノリノール）アルミニウム、ビス（8-キノリノール）ベリリウム、ビス（2-メチル-8-ベリリウムなどがある。

【0102】本発明に用いられる白色有機EL素子においては、青色蛍光体を含有させる。青色蛍光体は溶液状態での蛍光ピーク波長が380nm以上480nm未満である有機化合物であれば特に制限はない。特開平5-129438号明細書に記載されているスチルベン誘導体、ジスチルアリレン誘導体及びトリススチルアリレン誘導体の中から選ばれた少なくとも一種を含有させるのが好ましい。該スチルベン誘導体とは、少なくとも2つの芳香族環を有し、これら芳香族環をビニル基

又は置換されたビニル基により結合して構成され、かつ上記芳香族環又はビニル基のいずれかに電子供与性基を有する化合物である。ジスチルアリーレン誘導体とは、1つのアリーレン基に2つの芳香族環がビニル基又は置換ビニル基を介して結合し、かつ電子供与性基を有する化合物である。トリスチルアリーレン誘導体とは、1つの三価の芳香族環基に3つの芳香族環がビニル基又は置換ビニル基を介して結合し、かつ電子供与性基を有する化合物である。電子供与性基を分子骨格に有する前記誘導体において該電子供与性基とは、好ましくは炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数6～10のアリールオキシ基及び炭素数1～30の炭化水素基を有するアミノ基を示す。上記誘導体において、特に好ましいものは下記一般式(IV)～(X)で表される化合物であり、(IV)及び(V)はスチルベン誘導体、(VI)及び(VII)はジスチルアリーレン誘導体、(VIII)～(X)はトリスチルアリーレン誘導体を表す。

【0103】

【化32】



【0106】〔式中、 Ar^2 及び Ar^3 は、それぞれ独立に炭素数6～20のアリーレン基を示し、 Ar^4 は炭素数6～20のアリール基を示す。 $\text{R}^{11} \sim \text{R}^{18}$ は、それぞれ独立に水素原子又は炭素数6～20のアリール基を示す。ここで、 $\text{Ar}^2 \sim \text{Ar}^4$ 、 $\text{R}^{11} \sim \text{R}^{18}$ は、それぞれ独立に無置換でもよいし、炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数6～10のアリールオキシ基、炭素数6～10のアラルキル基又は

【0104】〔式中、 Ar^1 は炭素数6～20のアリール基を示す。 $\text{R}^7 \sim \text{R}^{10}$ は、それぞれ独立に水素原子又は炭素数6～20のアリール基を示す。 $\text{D}^1 \sim \text{D}^3$ は、それぞれ独立に電子供与性基で置換された炭素数6～20のアリール基又は炭素数10～30の縮合多環族基を示す。ここで、 Ar^1 、 $\text{R}^7 \sim \text{R}^{10}$ は、それぞれ独立に無置換でもよいし、炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数6～10のアリールオキシ基、炭素数6～10のアラルキル基又は炭素数1～20の炭化水素基を有するアミノ基で置換されていてもよい。また、この置換基が互いに結合し、飽和もしくは不飽和の五員環ないし六員環を形成してもよい。〕

【0105】

【化33】

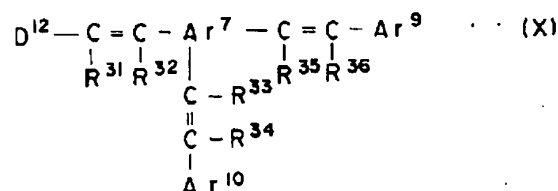
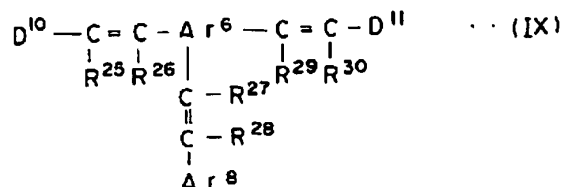
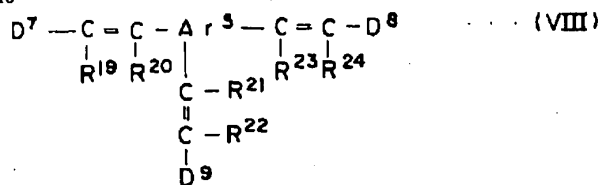
炭素数1～20の炭化水素基を有するアミノ基で置換されていてもよい。また、これらの置換基が互いに結合して飽和もしくは不飽和の五員環ないし六員環を形成してもよい。 $\text{D}^4 \sim \text{D}^6$ は、それぞれ独立に電子供与性基で置換された炭素数6～20のアリール基又は炭素数10～30の縮合多環族基を示す。〕

【0107】

【化34】

43

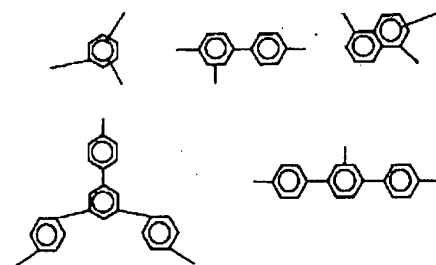
44



【0108】〔式中、 $Ar^5 \sim Ar^7$ は、それぞれ独立に炭素数 6～24 の三価の芳香族環基を示し、 $Ar^8 \sim Ar^{10}$ は、それぞれ独立に炭素数 6～20 のアリール基を示す。 $R^{19} \sim R^{36}$ は、それぞれ独立に水素原子又は炭素数 6～20 のアリール基を示す。 $D^7 \sim D^{12}$ は、それぞれ独立に電子供与性基で置換された炭素数 6～20 のアリール基又は炭素数 10～30 の縮合多環族基を示す。ここで、 $Ar^5 \sim Ar^7$ 、 $R^{19} \sim R^{36}$ は、それぞれ独立に無置換でもよいし、炭素数 1～10 のアルキル基、炭素数 1～10 のアルコキシ基、炭素数 6～10 のアラルキル基、炭素数 6～10 のアリールアルキル基又は炭素数 1～20 の炭化水素基を有するアミノ基で置換されていてもよい。また、これらの置換基が互いに結合し、飽和もしくは不飽和の五員環ないし六員環を形成してもよい。〕上記一般式 (IV) ～ (X) におけるアリール基としては、好ましくはフェニル基、ビフェニル基、ナフチル基、ピレニル基、ターフェニル基、アントラニル基、トリル基、キシリル基、スチルベニル基、チエニル基、ビチエニル基、チオフェン基、ピチオフェン基、ターチオフェン基などが挙げられる。アリレン基としては、好ましくはフェニレン基、ビフェニレン基、ナフチレン基、アントラニレン基、ターフェニレン基、ピレニレン基、スチルベニレン基、チエニレン基、ビチエニレン基などが挙げられる。三価の芳香族環基としては、好ましくは、

【0109】

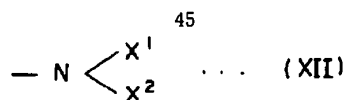
【化35】



【0110】が挙げられる。また、上記置換基であるアリールオキシ基としては、フェニルオキシ基、ビフェニルオキシ基、ナフチルオキシ基、アントラニルオキシ基、ターフェニルオキシ基、ピレニルオキシ基などが挙げられ、アルキル基としては、メチル基、エチル基、イソプロピル基、ターシャルブチル基、ペンチル基、ヘキシル基などが挙げられる。アルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、イソプロポキシ基、ターシャルブトキシ基、ペンチルオキシ基などが挙げられ、炭化水素基を有するアミノ基としては、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、フェニルエチルアミノ基、フェニルメチルアミノ基、ジトリルアミノ基、エチルフェニルアミノ基、フェニルナフチルアミノ基、フェニルビフェニルアミノ基などが挙げられる。前記一般式 (IV) ～ (X) における $D^1 \sim D^{12}$ は、電子供与性基で置換された炭素数 1～20 のアリール基、又は炭素数 10～30 の縮合多環族基である。ここで、電子供与性基とは、好ましくは炭素数 1～10 のアルコキシ基、炭素数 6～20 のアリールオキシ基、炭素数 1～30 の炭化水素基を有するアミノ基が挙げられ、特に好ましくは炭素数 1～30 の炭化水素基を有するアミノ基が挙げられる。このアミノ基としては、一般式 (XII)

【0111】

【化36】



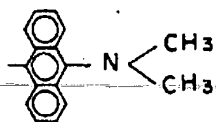
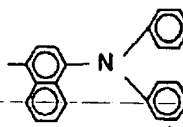
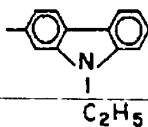
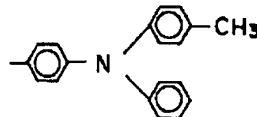
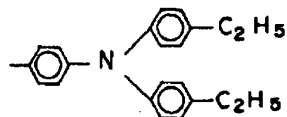
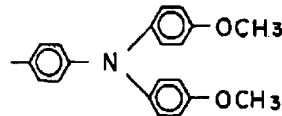
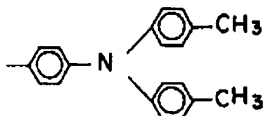
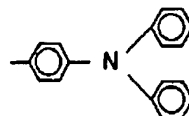
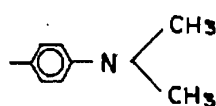
【0112】〔式中、 X^1 及び X^2 は、それぞれ独立に炭素数6～20のアリール基、炭素数1～10のアルキル基又は炭素数6～20のアラルキル基を示し、互いに結合して飽和又は不飽和の環状構造を形成してもよい。また、 X^1 、 X^2 には、炭素数1～10のアルキル基、炭素数7～10のアラルキル基、炭素数6～10のアリールオキシ基又は炭素数6～10のアルコキシ基が置換してもよい。さらに、一般式 (XII) で表されるアミノ基に置換するアリール基としての X^1 と X^2 が互いに結合した含窒素芳香族環基となってもよい。〕で表されるものが挙げられる。上記電子供与性基としては、例えば

フェニルオキシ基、ビフェニルオキシ基、ナフチルオキシ基、アントラニルオキシ基、ターフェニルイルオキシ基などのアリールオキシ基、メトキシ基、エトキシ基、イソプロポキシ基、ターシヤルブチルオキシ基、ペンチルオキシ基などのアルコキシ基、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、フェニルメチルアミノ基、フェニルエチルアミノ基、フェニルメチルエチルアミノ基、ジトリルアミノ基、エチルフェニルアミノ基、フェニルナフチルアミノ基、フェニルビフェニルアミノ基などの炭化水素基を有するアミノ基などが挙げられる。また、 $D^1 \sim D^{12}$ の具体例としては、

【0113】

【化37】

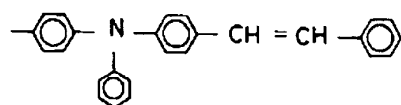
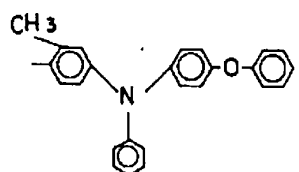
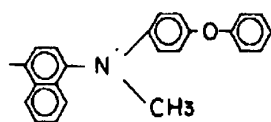
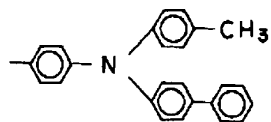
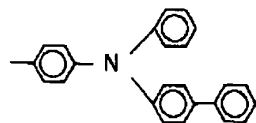
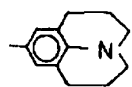
比 42



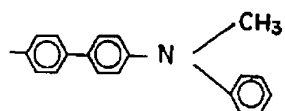
【0114】

【化38】

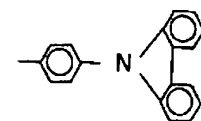
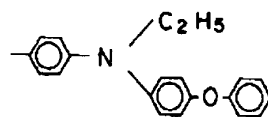
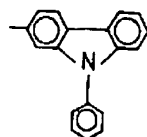
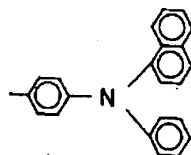
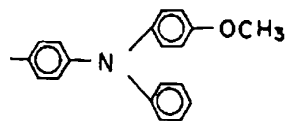
47



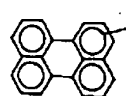
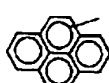
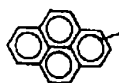
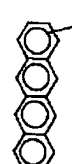
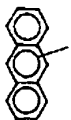
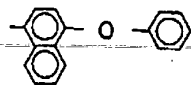
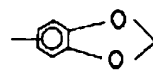
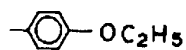
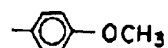
【0115】



48

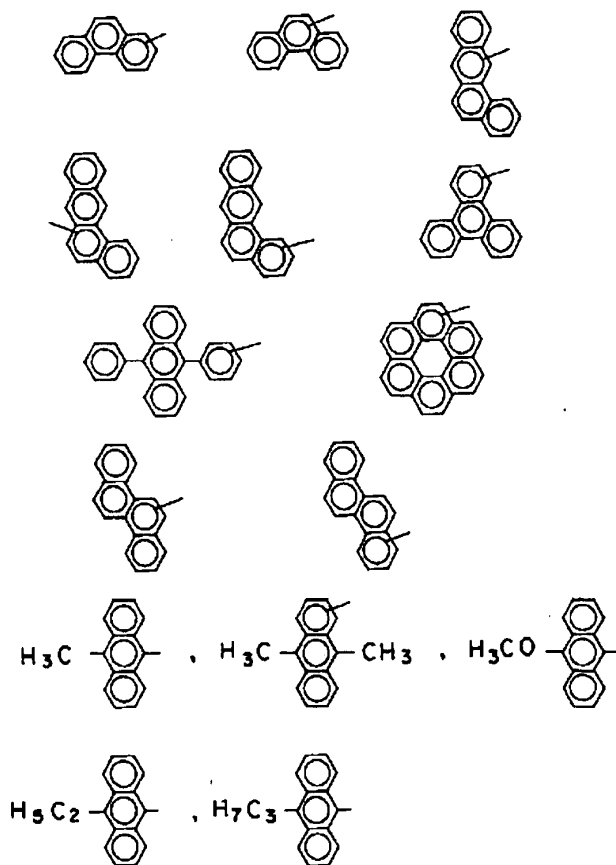


【化39】



【0116】

【化40】



【0117】などが挙げられる。上記一般式(IV)～

(X)で表される化合物の具体例としては、

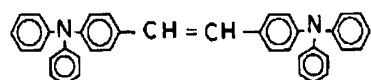
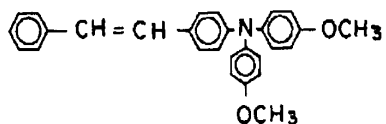
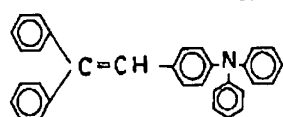
【0118】

【化41】

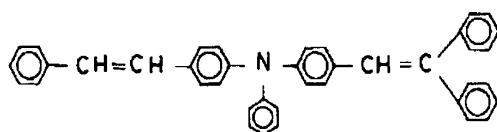
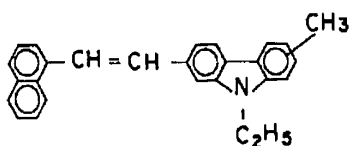
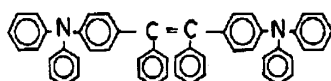
51

【0119】

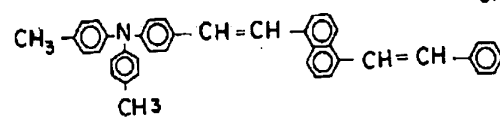
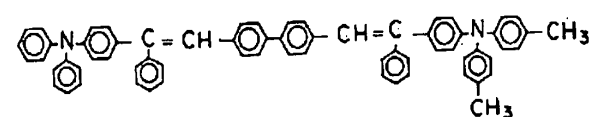
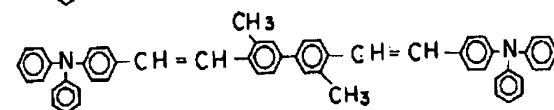
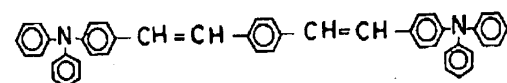
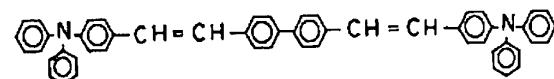
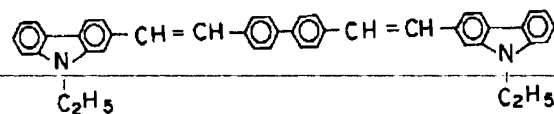
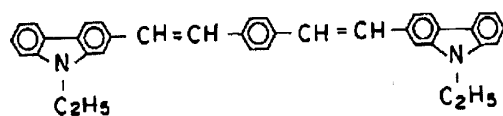
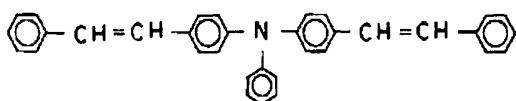
【化42】



10

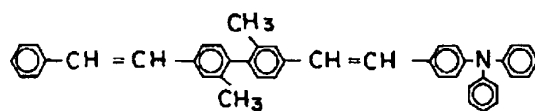
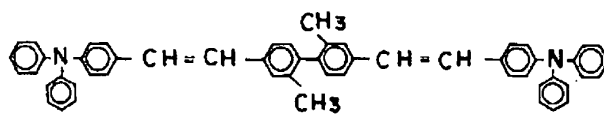
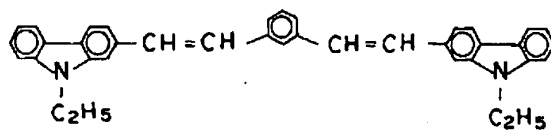
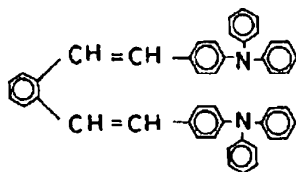
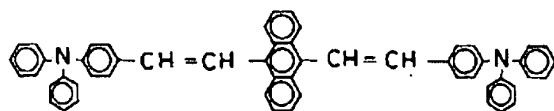
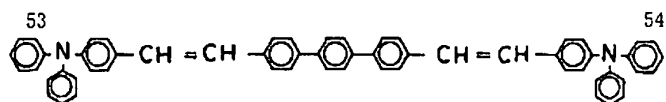


20



【0120】

50 【化43】

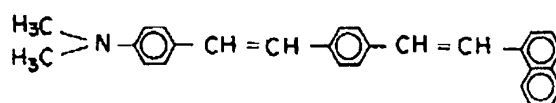
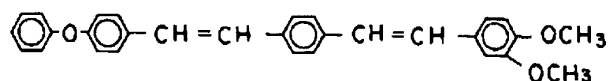
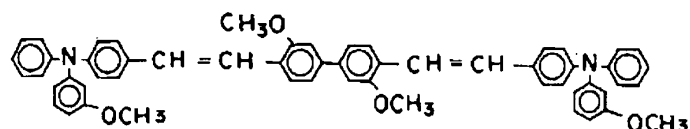
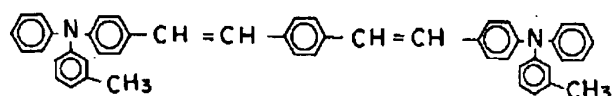
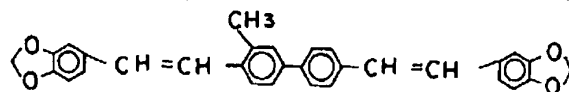
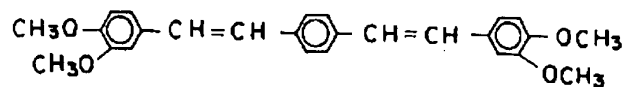
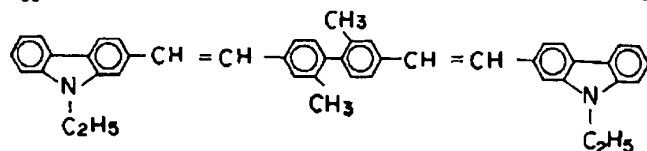


【0121】

【化44】

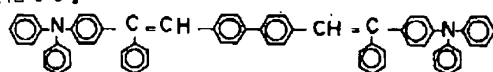
55

56

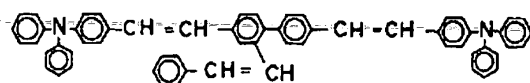
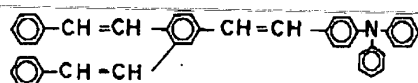
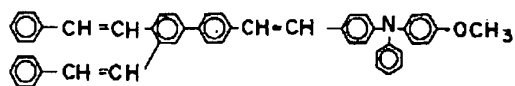
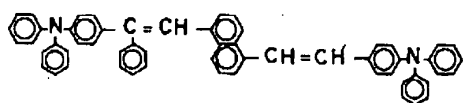
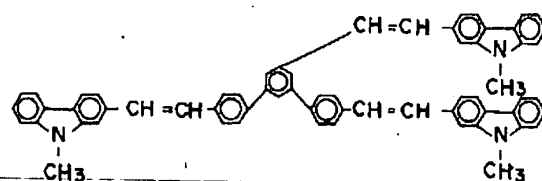


【0122】

【化45】

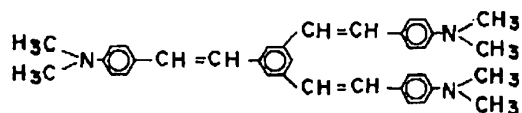
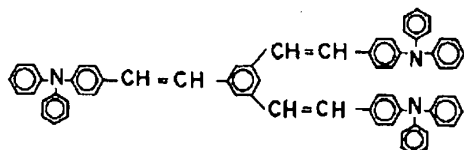


30



【0124】

40 【化47】

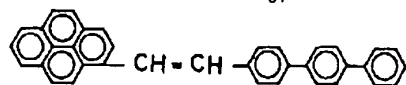


【0123】

【化46】

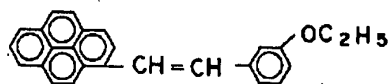
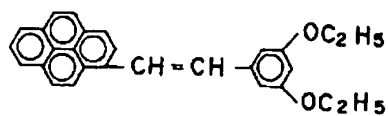
50

57

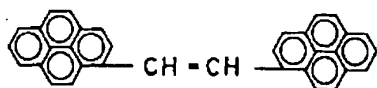
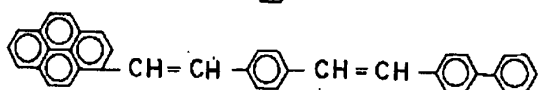
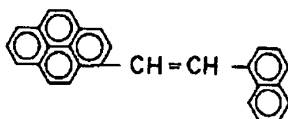


[0125]

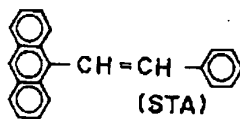
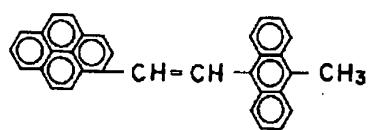
[化48]



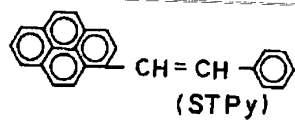
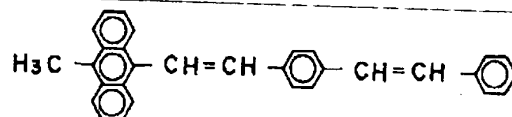
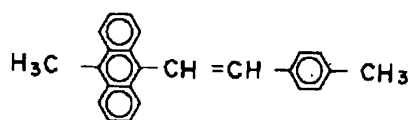
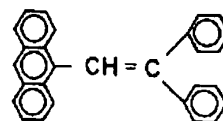
10



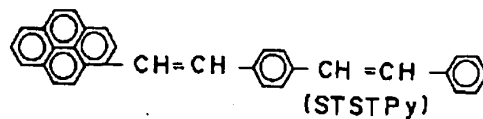
20



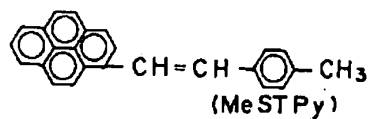
(STA)



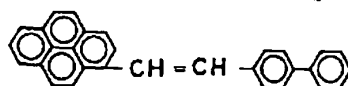
(STPy)



(STSTPy)

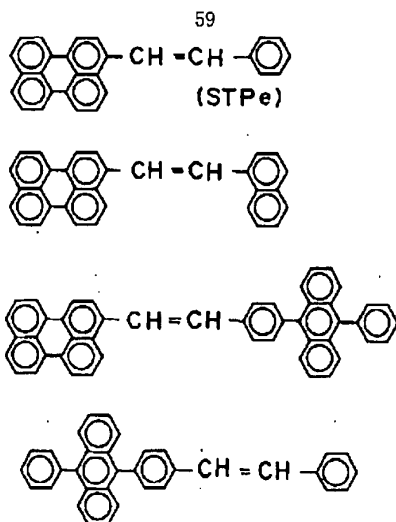


(MeSTPy)



[0126]

50 [化49]



【0127】などが挙げられ、その他の青色蛍光体として好ましいものとして、アントラセン、ペリレン、コロン等の多環芳香族やそのアルキル置換体がある。

【0128】緑色蛍光体としては溶液状態での蛍光ピーク波長が480nm以上580nm未満である有機化合物であれば特に制限はない。ドープする緑色蛍光体としては、3-(2'-ベンジミダゾリル)-7-N, N-ジエチルアミノクマリン(クマリン535)、3-(2'-ベンゾチアゾリル)-7-ジエチルアミノクマリン(クマリン540)、2, 3, 5, 6-1H, 4H-テトラヒドロ-8-トリフルオロメチルキノリジノ-9, 9a, 1-g h>クマリン(クマリン540A)、3-(5-クロロ-2-ベンゾチアゾリル)-7-ジエチルアミノクマリン(クマリン34)、4-トリフルオロメチル-ペリジノ[3, 2-g]クマリン(クマリン340)、N-エチル-4-トリフルオロメチル-ペリジノ[3, 2-g]クマリン(クマリン3-5-5)、N-メチル-4-トリフルオロメチル-ペリジノ

[2, 3-h]クマリン、9-シアノ-1, 2, 4, 5-3H, 6H, 10H-テトラヒドロ-1-ベンゾピラン[9, 9a-1-g h]キノリジノ-10-オン(クマリン337)等のクマリン化合物、2, 7-ジクロロフルオレセン等のキサンチン色素、テトラセン、キナクリドン化合物等が挙げられる。

【0129】赤色蛍光体として好ましい有機化合物としては、溶液状態でのピーク波長が580nm以上650nm以下であればよく、特に制限はないが、例えば、ヨーロッパ公開特許第0281381号公報に記載されている赤色発進レーザー色素として用いられるジシアノメチレンピラン誘導体、ジシアノメチレンチオピラン誘導体、フルオレセイン誘導体、ペリレン誘導体などが挙げられる。具体的には、

【0130】

【化50】

【0131】などが挙げられる。これらの有機化合物は、層を形成する有機化合物に対して、0.1~10モル%、好ましくは0.5~5モル%の割合で含有させることが必要である。この0.1~10モル%というのは、濃度消光を生じないための濃度範囲である。

(2) 正孔注入層

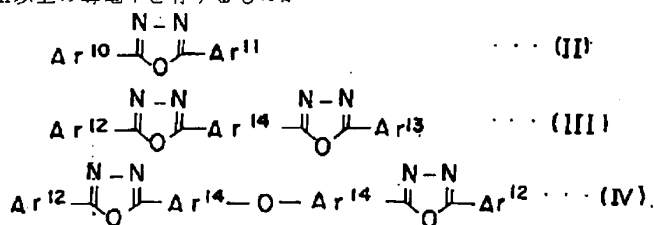
次に、正孔注入層は、必ずしも本発明に用いられる素子に必要なものではないが、発光性能の向上のために用いた方が好ましいものである。この正孔注入層は発光層への正孔注入を助ける層であって、正孔移動度が大きく、イオン化エネルギーが、通常5.5eV以下と小さい。このような正孔注入層としては、より低い電界で正孔を発光層に輸送する材料が好ましく、さらに正孔の移動度が、たとえば $10^4 \sim 10^6$ V/cmの電界印加時に、少なくとも 10^{-6} cm²/V・secであればなお好ましい。このような正孔注入材料については、前記の好ましい性質を有するものであれば特に制限はなく、従来、光導伝材料において、正孔の電荷輸送材として慣用されているものや、EL素子の正孔注入層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

【0132】具体例としては、例えばトリアゾール誘導体(米国特許3,112,197号明細書等参照)、オ

キサジアゾール誘導体(米国特許3,189,447号明細書等参照)、イミダゾール誘導体(特公昭37-16096号公報等参照)、ポリアリーラルカン誘導体(米国特許3,615,402号明細書、同第3,820,989号明細書、同第3,542,544号明細書、特公昭45-555号公報、同51-10983号公報、特開昭51-93224号公報、同55-17105号公報、同56-4148号公報、同55-108667号公報、同55-156953号公報、同56-36656号公報等参照)、ピラゾリン誘導体およびピラズロン誘導体(米国特許第3,180,729号明細書、同第4,278,746号明細書、特開昭55-88064号公報、同55-88065号公報、同49-105537号公報、同55-51086号公報、同56-80051号公報、同56-88141号公報、同57-45545号公報、同54-112637号公報、同55-74546号公報等参照)、フェニレンジアミン誘導体(米国特許第3,615,404号明細書、特公昭51-10105号公報、同46-3712号公報、同47-25336号公報、特開昭54-53435号公報、同54-110536号公報、同54-119925号公報等参照)、アリーラルアミン誘導体(米国特許第3,567,450号明細書、同第3,180,703号明細書、同第3,240,597号明細書、同第3,658,520号明細書、同第4,232,103号明細書、同第4,175,961号明細書、同第4,012,376号明細書、特公昭49-35702号公報、同39-27577号公報、特開昭55-144250号公報、同56-119132号公報、同56-22437号公報、西独特許第1,110,518号明細書等参照)、アミノ置換カルコン誘導体(米国特許第3,526,501号明細書等参照)、オキサゾール誘導体(米国特許第3,257,203号明細書等に開示のもの)、スチリルアントラセン誘導体(特開昭56-46234号公報等参照)、フルオレノン誘導体(特開昭54-110837号公報等参照)、ヒドラゾン誘導体(米国特許第3,717,462号明細書、特開昭54-59143号公報、同55-52063号公報、同55-52064号公報、同55-46760号公報、同55-85495号公報、同57-11350号公報、同57-148749号公報、特開平2-311591号公報等参照)、スチルベン誘導体(特開昭61-210363号公報、同61-228451号公報、同61-14642号公報、同61-72255号公報、同62-47646号公報、同62-36674号公報、同62-10652号公報、同62-30255号公報、同60-93445号公報、同60-94462号公報、同60-174749号公報、同60-175052号公報等参照)、シラザン誘導体(米国特許第4,950,950号明細書)、ポリシラ

ン系(特開平2-204996号公報)、アニリン系共重合体(特開平2-282263号公報)、特開平1-211399号公報に開示されている導電性高分子オリゴマー(特にチオフェンオリゴマー)等を挙げることができる。正孔注入層の材料としては上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物(特開昭63-2956965号公報等に開示のもの)、芳香族第三級アミン化合物およびスチリルアミン化合物(米国特許第4,127,412号明細書、特開昭53-27033号公報、同54-58445号公報、同54-149634号公報、同54-64299号公報、同55-79450号公報、同55-144250号公報、同56-119132号公報、同61-295558号公報、同61-98353号公報、同63-295695号公報等参照)、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。上記ポルフィリン化合物の代表例としては、ポルフィン、1,10,15,20-テトラフェニル-21H,23H-ポルフィン銅(II)、1,10,15,20-テトラフェニル-21H,23H-ポルフィン亜鉛(II)、5,10,15,20-テトラキス(ペンタフルオロフェニル)-21H,23H-ポルフィン、シリコンフタロシアニンオキシド、アルミニウムフタロシアニンクロリド、フタロシアニン(無金属)、ジリチウムフタロシアニン、銅テトラメチルフタロシアニン、銅フタロシアニン、クロムフタロシアニン、亜鉛フタロシアニン、鉛フタロシアニン、チタニウムフタロシアニンオキシド、Mgフタロシアニン、銅オクタメチルフタロシアニン等を挙げることができる。また、前記芳香族第三級アミン化合物およびスチリルアミン化合物の代表例としては、N,N,N',N'-テトラフェニル-4,4'-ジアミノフェニル、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-[1,1'-ビフェニル]-4,4'-ジアミン(以下TPDと略記する)、2,2-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)プロパン、1,1-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン、N,N,N',N'-テトラ-*p*-トリル-4,4'-ジアミノフェニル、1,1-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)-4-フェニルシクロヘキサン、ビス(4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル)フェニルメタン、ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)フェニルメタン、N,N'-ジフェニル-N,N'-ジ(4-メトキシフェニル)-4,4'-ジアミノビフェニル、N,N,N',N'-テトラフェニル-4,4'-ジアミノフェニルエーテル、4,4'-ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル、N,N,N'-トリ(*p*-トリル)アミン、4-(ジ-*p*-トリルアミノ)-4'-[4-(ジ-*p*-トリルアミノ)スチリル]スチルベン、4-N,N-ジフェニルアミノ-(2-ジフェニルピニル)ベンゼン、3-メトキシ-4'-N,N-ジフェニル

ルアミノスチルベンゼン、N-フェニルカルバゾール、米国特許第5,061,569号に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有する、例えば、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(以下NPDと略記する)、また、特開平4-308688号公報で記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4,4',4''-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン(以下MTDTAと略記する)等を挙げることができる。また、発光層の材料として示した前述の芳香族ジメチリデン系化合物の他、p型-Si, p型SiC等の無機化合物も正孔注入層の材料として使用することができる。正孔注入層は、上述した化合物を、例えば真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、LB法等の公知の方法により薄膜化することにより形成することができる。正孔注入層としての膜厚は、特に制限はないが、通常は5nm~5μmである。この正孔注入層は、上述した材料の一種または二種以上からなる一層で構成されていてもよい、または、前記正孔注入層とは別種の化合物からなる正孔注入層を積層したものであってもよい。また、有機半導体層は、発光層への正孔注入または電子注入を助ける層であって、 10^{-10} S/cm以上の導電率を有するものが



【0134】〔式中Ar¹⁰~Ar¹³はそれぞれ置換または無置換のアリール基を示し、Ar¹⁰とAr¹¹およびAr¹²とAr¹³はそれぞれにおいて互いに同一であっても異なってもよく、Ar¹⁴置換または無置換のアリレン基を示す。〕で表わされる電子伝達化合物が挙げられる。ここで、アリール基としてはフェニル基、ビフェニル基、アンドラニル基、ペリレン基、ピレン基などが挙げられ、アリレン基としてはフェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、アントラセニレン基、ペ

好適である。このような有機半導体層の材料としては、含チオフェンオリゴマーや含アリールアミンオリゴマーなどの導電性オリゴマー、含アリールアミンデンドリマーなどの導電性デンドリマーなどを用いることができる。

(3) 電子注入層

一方電子注入層は、発光層への電子の注入を助ける層であって、電子移動度が大きく、また付着改善層は、この電子注入層の中で、特に陰極との付着が良い材料からなる層である。電子注入層に用いられる材料としては、たとえば8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体、あるいはオキサジアゾール誘導体が好ましく挙げられる。また、付着改善層に用いられる材料としては、特に8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体が好適である。上記8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体の具体例としては、オキシシ(一般に8-キノリノールまたは8-ヒドロキシキノリン)のキレートを含む金属キレートオキシノイド化合物が挙げられる。一方、オキサジアゾール誘導体としては、一般式(II)、(III)および(IV)

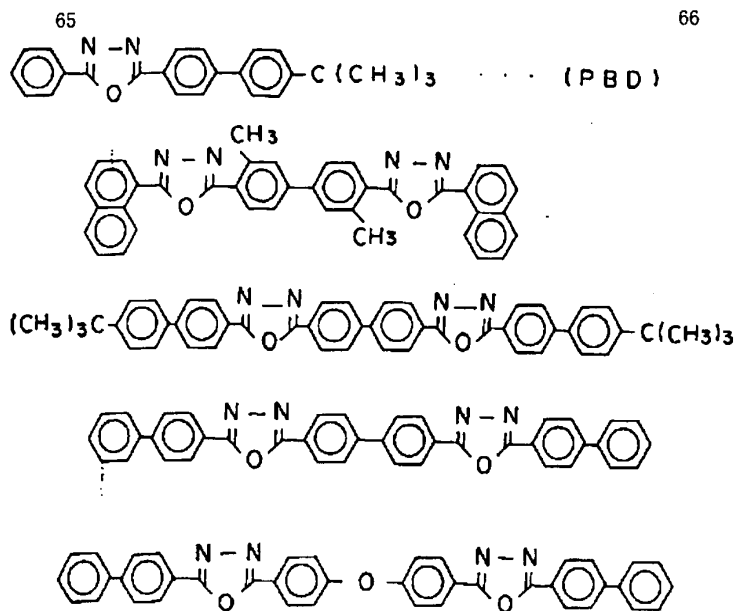
【0133】

【化51】

ニレニレン基、ピレニレン基などが挙げられる。また、置換基としては炭素数1~10のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基またはシアノ基などが挙げられる。この電子伝達化合物は、薄膜形成性のものが好ましい。上記電子伝達化合物の具体例としては、下記のものが挙げられる。

【0135】

【化52】



【0136】

【実施例】以下、本発明を実施例によってさらに具体的に説明する。

【実施例1】25mm×75mm×1.1mmのサイズのガラス基板上にITO電極を100nmの厚さで成膜したものを透明支持基板とした。これをイソプロピルアルコールで5分間超音波洗浄した後、純水で5分間洗浄し最後に再びイソプロピルアルコールで5分間超音波洗浄した。そしてこの透明支持基板を市販の真空蒸着装置（日本真空技術社製）の基板ホルダーに固定し、モリブデン製の抵抗加熱ポート7つを用意してそれぞれに【化53】に示す4, 4'-トリス-[N-(m-トリル)-N-フェニルアミノ]-トリフェニルアミン（MTDATA）を500mg、N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス-(3-メチルフェニル)-[1, 1'-ビフェニル]-4, 4'-ジアミン（TPD）を200mg入れ、4, 4'-ビス(2, 2-ジフェニルビニル)ビフェニル（DPVBi）を200mg入れ、4, 4'-ビス[2-(4-(N, N'-ジフェニルアミノ)フェニル)ビニル]ビフェニル（DPAVBi）を200mg入れ、【化53】に示すキナクリドン（QN）を200mg入れ、【化53】に示すDCMを200mg入れ、最後にトリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム（Alq）を100mg入れた真空チャンバー内を 1×10^{-4} Paまで減圧した。そして、まずMTDATA入りのポートを加熱してMTDATAを基板上に堆積させ、膜厚60nmの正孔注入層を成膜した。次に、TPD入りの前記ポートを加熱しTPDを蒸発させて、膜厚20nmの正孔輸送層を成膜した。続いて、DPVBi入りのポートとDPAVBi入りのポートを同時に加熱蒸発させ正孔輸送層の上に、青色発光層とし

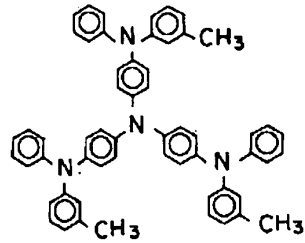
て20nm積層蒸着した（混合比はDPVBi : DPAVBi = 40 : 1 重量比）。次にDPVBi入りポートとQN入りポートを同時に加熱蒸発させ、緑色発光層として10nm積層蒸着した（混合比はDPVBi : QN = 40 : 1 重量比）。次に、DPVBi入りポートとDCM入りポートを同時に加熱蒸発させ、赤色発光層として10nm積層蒸着した（混合比はDPVBi : DCM = 40 : 3 重量比）。最後にAlq（電子注入層）を20nm堆積させた。そしてこれを真空槽から取り出して、上記発光層の上にステンレススチール製のマスクを設置し、再び基板ホルダーに固定した。さらに、タングステン製バスケットにAgワイヤー0.5g入れ、また別のモリブデン製ポートにMgリボン1gを入れた。真空槽内を 1×10^{-4} Paまで減圧して、その上にMgを1.8nm/s、同時にAgを0.1nm/sの蒸着速度で蒸着して陰電極を作製した。素子は8Vの電圧をITOを陽極、Mg : Agを陰極として印加すると、白色の均一発光した（CIE色度座標（0.36, 0.34））。素子は8Vで電流密度2.1mA/cm²、輝度200cd/m²であった。効率3.74(lm/W)であった。

【0137】【実施例2】緑色発光層をAlqと【化53】に示すクマリンの混合発光層（混合比はAlq : クマリン = 40 : 1 重量比）としたこと以外は実施例1と全く同様に素子を作製した。素子は8Vで電流密度1.9mA/cm²、輝度196cd/m²で白色均一発光した（CIE色度座標（0.34, 0.33））。効率3.96(lm/W)であった。

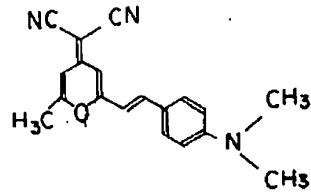
【0138】

【化53】

67

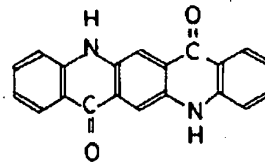


MTDATA

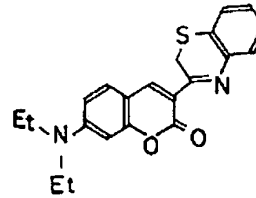


DCM

68



QN



フマリン

【0139】〔実施例3〕各発光層の厚さを5nmとし発光層作製において実施例1の操作を2度繰り返した以外は実施例1と同様に素子を作製した。すなわち素子構成は、ガラス基板／ITO／MTDATA／TPD／青色発光層／緑色発光層／赤色発光層／青色発光層／緑色発光層／赤色発光層／電子注入層／Mg:Agである。素子は8Vで電流密度3.7mA/cm²、輝度250cd/m²で白色均一発光した(CIE色度座標(0.36, 0.34))。効率2.56(lm/W)であった。

【0140】

【発明の効果】以上説明したように本発明によって、高輝度、高効率の白色発光が可能な有機EL発光装置を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の有機EL発光装置の一実施形態を模式的に示す断面図である。

【符号の説明】

- 10 基板
- 20 基板電極
- 30 発光層を含む有機物層
- 31 青色発光層
- 32 緑色発光層
- 33 赤色発光層
- 34 正孔注入層
- 35 電子注入層
- 40 対向電極

【図1】

